Untersuchungen zum Relaxationsverhalten von Quecksilberatomen im metastabilen $6\,^3P_2$-Zustand bei Stoßprozessen

Dissertation
zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften
dem Fachbereich Physik
der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

vorgelegt von
Walter Koch
aus Trossingen

1978

Untersuchungen zum Relaxationsverhalten von Quecksilberatomen im metastabilen $6\,^3P_2$-Zustand bei Stoßprozessen

Dissertation
zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften
dem Fachbereich Physik
der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

vorgelegt von
Walter Koch
aus Trossingen

1978

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Tag der mündlichen Prüfung: 13. Februar 1978

Dekan: Prof. Dr. E. Schmid

1. Berichterstatter: Prof. Dr. M. Baumann

2. Berichterstatter: Prof. Dr. H. Krüger

Inhaltsverzeichnis

Seite

I. Einleitung 3

II. Messmethode 6

2.1 Orientierung - Ausrichtung 6

2.2 Optische Anregung 11

2.3 Nachweis von Besetzungsdifferenzen im $6\,^3P_2$-Zustand von Quecksilberatomen 14

III. Experimenteller Aufbau und Messergebnisse 19

3.1 Anordnung zur Messung der Relaxationsraten γ_2 einer Ausrichtung der Quecksilberatome im $6\,^3P_2$-Zustand 19

3.2 Ergebnisse zur Messung der Relaxationsraten γ_2 bei Fremdgasstößen 24

3.3 Anordnung zur Messung der Relaxationsraten γ_1 einer Orientierung der Quecksilberatome im $6\,^3P_2$-Zustand 31

3.4 Ergebnisse zur Messung der Relaxationsraten γ_1 bei Fremdgasstößen 35

3.5 Bestimmung der Quenchlebensdauer des $6\,^3P_2$-Zustandes von Quecksilber 39

3.6 Quenchquerschnitte 43

3.7 Wirkungsquerschnitte für Quecksilber-Quecksilberstöße 47

3.8 Vergleich der Wirkungsquerschnitte mit anderen Messungen 49

IV. Vergleich der Messergebnisse mit entsprechenden theoretischen Ergebnissen 52

V. Zusammenfassung 58

VI. Literaturverzeichnis 59

I. Einleitung

In den letzten Jahren wurde eine Vielzahl von Untersuchungen zur Desorientierung angeregter Atome bei Stoßprozessen durchgeführt. Dabei waren auch die metastabilen $^3P_2$-Zustände der Elemente Quecksilber/1-8/, Cadmium/9,10/ sowie Zink /11/ von gewissem Interesse. Neben diesen experimentellen Untersuchungen beschäftigen sich auch eine Reihe theoretischer Arbeiten mit desorientierenden Stößen in angeregten Zuständen mit J=1 und J=2 /12-17/. Zur Beschreibung der Wechselwirkung beim Stoß verwenden die oben genannten theoretischen Arbeiten das elektrostatische Dipol-Dipolpotential. Dieser Potentialansatz erfordert jedoch für kleine Stoßparameter Näherungsannahmen. Experimentelle Daten sind deshalb im Hinblick auf eine Überprüfung der theoretischen Annahmen von Interesse. In diesem Zusammenhang wurden in der vorliegenden Arbeit die Wirkungsquerschnitte für desorientierende Stöße von Quecksilberatomen im metastabilen $6\,^3P_2$-Zustand mit Fremdgasatomen bestimmt.

Zur experimentellen Untersuchung solcher Relaxationsprozesse muß durch ungleichmäßige Besetzung in den Zeemanniveaus des $6\,^3P_2$-Zustandes zunächst eine Orientierung bzw. eine Ausrichtung (vgl. 2.1) aufgebaut werden. Die Anregung des metastabilen $^3P_2$-Zustandes kann dabei direkt durch Elektronenstoß /18,19/ erfolgen, oder indirekt über

einen Zweistufenabsorptionsprozess mit nachfolgender Emission in den $^3P_2$-Zustand /5,8,20/. Durch Elektronenstoßanregung kann allerdings nur eine Ausrichtung des 6 $^3P_2$-Zustandes der Quecksilberatome erzielt werden. Deshalb wurde der 6 $^3P_2$-Zustand in der vorliegenden Arbeit durch die optische Anregung besetzt. Der Nachweis einer Änderung der Besetzungsdifferenzen zwischen den Zeemanniveaus durch Relaxationsprozesse erfolgt dann bei diesem metastabilen Zustand über die Beobachtung der Absorption geeignet polarisierten Lichtes.

Erste Messungen der Wirkungsquerschnitte für den Abbau einer Ausrichtung durch Stöße mit Edelgasen bei einer optischen Anregung des 6 $^3P_2$-Zustandes führten Barrat und Casalta /5/ durch. Neuere Messungen von Lahaye /8/ bestätigten die Ergebnisse von Barrat, Casalta im wesentlichen, ergänzten sie jedoch durch die Messung der Wirkungsquerschnitte für den Abbau einer Orientierung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilber bei Stößen mit Edelgasen. Bei diesen Messungen wurden die Relaxationsraten aus der Linienbreite von Hochfrequenzübergängen $\Delta m=\pm 1$ bestimmt. Dieses Verfahren ist jedoch sehr empfindlich auf Feldinhomogenitäten, die zu einer Linienverbreiterung führen können. Deshalb wurde in der vorliegenden Arbeit zur Messung der Relaxationsraten das von Jacobson/2,6,26/ angewandte Impulsverfahren benutzt, welches die Nachteile der Linienbreitenmessung vermeidet.

Außerdem ergaben sich bei der Messung der Wirkungsquerschnitte für den Abbau einer Ausrichtung der Quecksilberatome im 6 $^3P_2$-Zustand systematische Abweichungen zwischen Messungen mit Elektronenstoßanregung /3,4/ und Messungen mit optischer Anregung /5,8/. Es erschien deshalb als lohnend zur Klärung dieser Unterschiede die Wirkungsquerschnitte σ_1 für den Abbau einer Orientierung, sowie die Wirkungsquerschnitte σ_2 für den Abbau einer Ausrichtung des $^3P_2$-Zustandes der geraden Quecksilberisotope bei Stößen mit Edelgasen und mit Stickstoff zu messen und mit entsprechenden theoretischen Werten zu vergleichen.

II. Meßmethode

2.1 Orientierung - Ausrichtung

Befindet sich ein angeregtes Atom, das den Gesamtdrehimpuls $\vec{J}$ besitzt, in schwachen äußeren Magnetfeldern, so lässt sich die Wellenfunktion $|\Psi>$ des betrachteten Zustandes als eine Entwicklung nach einzelnen Zeemanzuständen $|m>$ angeben:

$$|\Psi> = \sum_{m=-J}^{J} a_m \cdot |m> \qquad (1)$$

Beobachtet man ein Ensemble angeregter Atome, so genügt es dieses Ensemble durch die Dichtematrix ρ zu beschreiben, wenn alle Atome des Ensembles den gleichen Wechselwirkungen unterliegen. Die Elemente $\rho_{mm'}$ der Dichtematrix sind wie folgt definiert:

$$\rho_{mm'} = <m|\rho|m'> = \overline{a_m a_{m'}^*} \qquad (2)$$

Für die Zeitentwicklung der Dichtematrix gilt /21/:

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[\mathcal{H},\rho] - \Gamma\cdot\rho + A \qquad (3)$$

Der Hamiltonoperator $\mathcal{H}$ gibt die Wechselwirkung der Atome mit den äußeren Feldern an. Die Relaxationsmatrix Γ beschreibt die Relaxations- und Quenchprozesse und die Matrix A beschreibt die Anregung der Atome. Die stationäre Lösung der Gleichung (3) ist durch $\dot{\rho} = 0$ gegeben. Die Zeitentwicklung der Dichtematrix ist in der Darstellung (3) in vielen Fällen unübersichtlich. Deshalb wählt man oft eine Darstellung, welche die Symmetrieeigenschaften von $\mathcal{H}$, Γ

und A ausnützt und die physikalische Interpretation erleichtert. Dazu geht man zu einer Entwicklung der Dichtematrix ρ nach irreduziblen Tensoroperatoren T_q^k über /21-25/. Mit diesen Tensoroperatoren lässt sich die Dichtematrix wie folgt schreiben:

$$\rho = \sum_{k=0}^{2J} \sum_{q=-k}^{k} (-1)^q \cdot \rho_q^k \, T_{-q}^k \qquad (4)$$

Die Matrixelemente der Operatoren T_q^k sind dabei durch folgende Beziehung gegeben:

$$(T_q^k)_{mm'} = (-1)^{J-m'} \frac{2k+1}{\sqrt{2J+1}} \begin{Bmatrix} J & k & J \\ -m & q & m' \end{Bmatrix} \qquad (5)$$

Der Klammerausdruck in Gleichung (5) ist ein Wignersches 3j-Symbol. Für J=1 erhält man aus Gleichung (5) die folgenden neun Matrizen T_q^k:

$$\begin{aligned} T_0^0 &= \frac{1}{\sqrt{3}} \mathbf{1} \; ; \; T_0^1 = \frac{1}{\sqrt{2}} J_z \; ; \; T_{\pm 1}^1 = \mp J_\pm \\ T_0^2 &= \frac{1}{\sqrt{6}} \left(3J_z^2 - J^2 \right) \\ T_{\pm 1}^2 &= \pm \frac{1}{2} \left(J_z J_\pm + J_\pm J_z \right) \\ T_{\pm 2}^2 &= \frac{1}{2} J_\pm^2 \end{aligned} \qquad (6)$$

J_z, J_+ und J_- sind Drehimpulsoperatoren. Die Gleichung (4) entspricht einer Entwicklung der Dichtematrix nach den Erwartungswerten von Multipolmomenten der Ordnung 2^k. Für die Entwicklungskoeffizienten ρ_q^k in Gleichung (4) gilt

wegen der Orthomormierung der T_q^k :

$$\rho_q^k = Sp(\rho \cdot T_q^k) = \langle T_q^k \rangle \qquad (7)$$

D.h. die Entwicklungskoeffizienten ρ_q^k der Dichtematrix nach irreduziblen Tensoren T_q^k lassen sich physikalisch interpretieren: Die ρ_q^k sind nach (6) und (7) proportional zum Mittelwert einer Komponente eines Multipolmomentes des Ensembles von Atomen mit dem Drehimpuls $\vec{J}$. So ist z.B. ρ_o^o proportional zur mittleren Besetzung aller Zeemanniveaus, die zum Zustand $|\Psi>$ gehören. Die Koeffizienten ρ_q^1 beschreiben die drei Komponenten einer Orientierung (engl.: orientation), sie entsprechen einem mittleren Dipolmoment des Ensembles von Atomen im Zustand $|\Psi>$. Die Größen ρ_q^2 ergeben die fünf Komponenten einer Ausrichtung (engl.: alignment) der Atome. Sie beschreiben ein mittleres Quadrupolmoment des Ensembles. Die Größen mit q=0 bezeichnet man als die longitudinalen Komponenten und die mit $q \neq 0$ als die transversalen Komponenten der jeweiligen Multipolordnung. Setzt man voraus, daß die Relaxation isotrop erfolgt, dann sind die Elemente der Relaxationsmatrix Γ nur noch von der Multipolordnung k abhängig, d.h. der Abbau einer Multipolordnung erfolgt bei Stoßprozessen für die longitudinale und für die transversalen Komponenten mit den gleichen Relaxationsraten g_k. Daß diese Annahme gerechtfertigt ist, wurde durch Messungen von Jacobson /26/ bestätigt. Diese Experimente ergaben für die longitudinale und für die transversalen Relaxationsraten g_2 für den

Abbau einer Ausrichtung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilber innerhalb einer Messgenauigkeit von etwa 3% gleiche Werte.

Für die longitudinale Komponente einer Orientierung ρ_o^1 gilt nach den Gleichungen (6) und (7) bezüglich der Quantisierungsachse z:

$$\rho_o^1 \sim \langle J_z \rangle = \sum_m m \cdot n_m \cdot \hbar \qquad (8)$$

Dabei ist n_m die Besetzungswahrscheinlichkeit des Zeemanniveaus $|J,m\rangle$. D.h. eine Orientierung lässt sich erzielen, wenn die Zeemanniveaus mit den Quantenzahlen +m und -m verschieden besetzt sind. Die longitudinale Komponente der Ausrichtung in Richtung der Quantisierungsachse z lässt sich gemäß (6) und (7) wie folgt darstellen:

$$\rho_o^2 \sim \langle J_z^2 - \tfrac{1}{3}J^2 \rangle = \sum_m (m^2 - \frac{\sum_{m'} m'^2}{2J+1}) \cdot n_m \cdot \hbar^2 \qquad (9)$$

Eine Ausrichtung liegt also vor, wenn jeweils ein Paar Zeemanniveaus $\pm m$ gleichbesetzt, jedoch die Zustände mit verschiedenem $|m|$ ungleichbesetzt sind, mit der Einschränkung, daß gilt:

$$\sum_m (m^2 - \frac{\sum_{m'} m'^2}{2J+1}) \, n_m \neq 0 \qquad (10)$$

Für einen Zustand mit der Gesamtdrehimpulsquantenzahl J=2 ergibt sich aus der Beziehung (10) die folgende Bedingung

für die Besetzungswahrscheinlichkeiten n_m, wobei $n_{+m} = n_{-m}$ gesetzt ist:

$$2 \cdot n_2 - n_1 - n_o \neq 0 \qquad (11)$$

Bei einem $^3P_2$-Zustand können auch noch höhere Multipolordnungen (k=3 und k=4) auftreten. Im Rahmen dieser Arbeit konnten jedoch nur Desorientierungsquerschnitte für den Abbau einer Orientierung (k=1) und den Abbau einer Ausrichtung (k=2) bei Stößen mit Fremdgasatomen bestimmt werden.

2.2 Optische Anregung

Die Anregung des metastabilen 6 $^3P_2$-Zustandes von Quecksilber muß über einen Zweistufenprozess erfolgen. Dazu wird zunächst mit der ultravioletten Interkombinationslinie (λ = 253,7 nm) der 6 $^3P_1$-Zustand aus dem Grundzustand angeregt. In einer zweiten Stufe wird nun vom 6 $^3P_1$-Zustand aus, mit Hilfe der blauvioletten Linie (λ = 436 nm), der 7 $^3S_1$-Zustand des Quecksilberatoms besetzt.

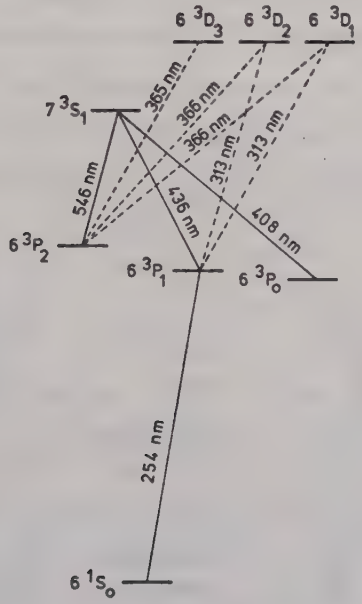


Abb. 1: Ausschnitt aus dem Termschema des Quecksilberatoms.

Der 7 $^3S_1$-Zustand zerfällt dann u.a. auch durch Emission der grünen Linie (λ = 546 nm) in den 6 $^3P_2$-Zustand. Dieses Verfahren wurde zuerst von Barrat, Cheron und Cojan /20/

zur Erzeugung einer Ausrichtung von Quecksilberatomen im 6 $^3P_2$-Zustand angewendet. Zur Messung der Relaxationsraten g_1 und g_2 muß die stufenweise Anregung des 6 $^3P_2$-zustandes so erfolgen, daß eine Orientierung, bzw. eine Ausrichtung der angeregten Atome entsteht. Dazu wird zunächst im 7 $^3P_2$-Zustand der Quecksilberatome eine Ausrichtung, bzw. eine Orientierung aufgebaut, die sich dann durch spontanen Zerfall des 7 $^3S_1$-Zustandes bis zu einem gewissen Grad in den 6 $^3P_2$-Zustand überträgt. Zur Erzeugung einer Ausrichtung im 7 $^3S_1$-Zustand der Quecksilberatome werden die Interkombinationslinie (λ = 253,7 nm) und die blauviolette Linie (λ = 436 nm) unpolarisiert in

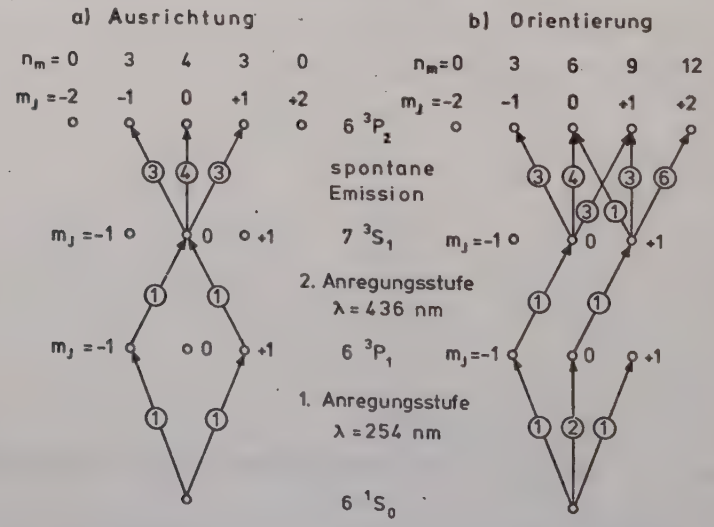


Abb. 2: Erzeugung einer Ausrichtung, bzw. einer Orientierung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilber durch eine optische Zweistufenanregung.

Feldrichtung eingestrahlt. Mit dieser Anordnung wird nur das Zeemanniveau mit m=0 im 7 $^3S_1$-Zustand besetzt und somit auch nur die mittleren Zeemanniveaus m=0 und m=$\pm$1 des 6 $^3P_2$-Zustandes (siehe Abb. 2a). Eine Orientierung wird im 7 $^3S_1$-Zustand aufgebaut, wenn die Anregung in der ersten Stufe unpolarisiert, jedoch senkrecht zur Richtung des äußeren Magnetfeldes erfolgt und die blauviolette Linie zirkular polarisiert in Feldrichtung eingestrahlt wird. Diese Orientierung überträgt sich dann durch spontane Emission teilweise in den 6 $^3P_2$-Zustand (siehe Abb. 2b).

2.3 Nachweis von Besetzungsdifferenzen im $6\,^3P_2$-Zustand von Quecksilberatomen

Der Nachweis der Orientierung bzw. der Ausrichtung erfolgt über die Absorption geeignet polarisierten Lichtes /27/. Dazu wird die grüne Quecksilberlinie (Übergang $7\,^3S_1$-$6\,^3P_2$), zum Nachweis einer Ausrichtung linear polarisiert (z.B. π-Licht), zum Nachweis einer Orientierung zirkular polarisiert (z.B. σ^+-Licht) eingestrahlt. Werden nun zwischen den einzelnen Zeemanniveaus magnetische Dipolübergänge ($\Delta m=\pm 1$) induziert, so ergibt sich eine Änderung in der Absorption der grünen Linie. Beobachtet man z.B. die Absorption von π-Licht bei konstanter Feldstärke des äußeren Magnetfeldes B_0 als Funktion der Frequenz ν des Hochfrequenzfeldes B_1, so erhält man im Falle der Resonanz eine Abnahme der Absorption, wenn die inneren Zeemanniveaus des Zustandes stärker besetzt sind als die äußeren. Die Resonanzfrequenz ist bei den geraden Quecksilberisotopen durch die Zeemanaufspaltung des Feinstrukturtermes gegeben:

$$\nu = \frac{g_J \cdot \mu_B}{h} B_0 \qquad (12)$$

Hier sind: g_J der Landé-Faktor, μ_B das Bohrsche Magneton und h das Plancksche Wirkungsquantum. Aus der zur Hochfrequenzfeldstärke Null extrapolierten Linienbreite lassen sich die Relaxationsraten γ_1 bzw. γ_2 für den Abbau einer Orientierung bzw. einer Ausrichtung bestimmen /28/.

Abb. 3 zeigt eine Resonanzkurve bei einer Ausrichtung der Atome im 6 $^3P_2$-Zustand, gemessen am natürlichen Isotopengemisch. Die Feldstärke des äußeren Magnetfeldes betrug bei dieser Messung $2{,}2 \cdot 10^{-4}$ T. Die Resonanz für die geraden Quecksilberisotope (I=0) liegt bei ν_o=4,61 MHz. Eine zweite Resonanz ist bei ν=3,69 MHz zu beobachten, die einem g-Faktor von g=1,2 entspricht. Diese Resonanz stammt vom F=5/2 Zustand von ^{199}Hg sowie vom F=3/2 Zustand von ^{201}Hg.

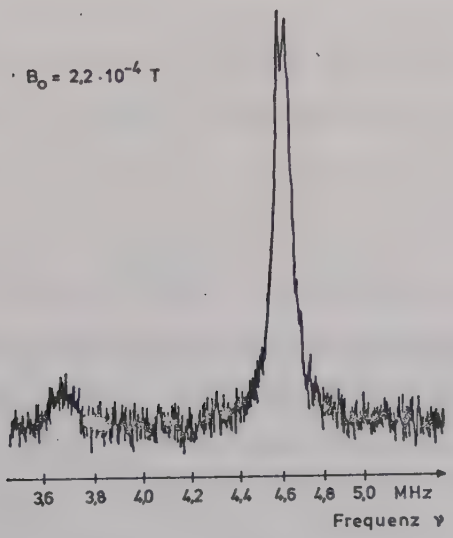


Abb. 3: Resonanzkurve bei einer Ausrichtung der Quecksilberatome im 6 $^3P_2$-Zustand, gemessen mit dem unter 3.1 beschriebenen Verfahren; Lock-in Zeitkonstante 1 sec.

In dem hier beschriebenen Experiment wurden die Relaxationsraten γ_1 und γ_2 jedoch nicht aus der Linienbreite von Hochfrequenzübergängen $\Delta m=\pm 1$ bestimmt, sondern es wurde die Zeitentwicklung des atomaren Systems nach Abschalten der Hochfrequenzfeldstärke direkt beobachtet. Nach dem Abschalten der Hochfrequenz baut sich unter der polarisierenden Wirkung des Pumplichtes und von Relaxationsprozessen die Orientierung (k=1), bzw. die Ausrichtung (k=2) im $6\,^3P_2$-Zustand der Quecksilberatome wieder mit den Zeitkonstanten γ_1, bzw. γ_2 auf. Für die Signalform gilt nach Jacobson /2,6,26/:

$$S_k(t) \sim (1 - e^{-\gamma_k \cdot t}) \qquad (13)$$

Die gemessenen Relaxationsraten γ_k setzen sich aus einem Anteil g_k (k=1,2) zusammen, der den Abbau der jeweiligen Multipolkomponente durch desorientierende Stöße beschreibt und der Quenchrate γ_o, die den Zerfall des gesamten $6\,^3P_2$-Zustandes durch Stoßprozesse angibt. Neben den Quecksilber-Fremdgasstößen finden auch Quecksilber-Quecksilberstöße statt, d.h. in den Relaxationsraten γ_k ist noch ein weiterer additiver Term γ_{Hg} enthalten. Zwischen diesen Größen besteht ein linearer Zusammenhang:

$$\gamma_k = \gamma_o + g_k + \gamma_{Hg} \quad (k=1,2) \qquad (14)$$

Der Beitrag der Quecksilber-Quecksilberstöße γ_{Hg} zur Relaxationsrate γ_k bleibt konstant, solange die Teilchen-

dichte des Quecksilbers konstant gehalten wird. Die Wirkungsquerschnitte σ_k für den Abbau einer einzelnen Multipolkomponente berechnen sich aus den Relaxationsraten g_k nach der folgenden Beziehung /29/:

$$g_k = N \cdot \sigma_k \cdot \bar{v}_{rel} \qquad (k=1,2) \qquad (15)$$

Eine entsprechende Beziehung gilt für den Quenchquerschnitt σ_o :

$$\gamma_o = N \cdot \sigma_o \cdot \bar{v}_{rel} \qquad (16)$$

Dabei ist N die Teilchendichte der stoßenden Gasmolelüle und $\bar{v}_{rel}$ die mittlere Relativgeschwindigkeit der Stoßpartner. Nimmt man eine Maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung der stoßenden Teilchen an, so gilt für die mittlere Relativgeschwindigkeit $\bar{v}_{rel}$ zwischen angeregten Quecksilberatomen und Fremdgasmolekülen:

$$\bar{v}_{rel} = \sqrt{\frac{8 \cdot k \cdot T}{\pi \cdot m_o} \left(\frac{1}{M_{Hg}} + \frac{1}{M_{Gas}} \right)} \qquad (17)$$

Hier sind: M_{Hg} die relative Molekülmasse von Quecksilber, M_{Gas} die relative Molekülmasse der Fremdgasmoleküle, m_o die atomare Masseneinheit, k die Boltzmannkonstante und T die Temperatur des Resonanzraumes.

Mit der Gasgleichung:

$$p = N \cdot k \cdot T \qquad (18)$$

sowie mit Gleichung (14) folgt aus Gleichung (15) die

folgende Beziehung für die Wirkungsquerschnitte σ_k:

$$\sigma_k = \frac{k \cdot T}{\bar{v}_{rel}} \cdot \left(\frac{\Delta\gamma_k}{\Delta p} - \frac{\Delta\gamma_o}{\Delta p} \right) \qquad (19)$$

Wird nun der Gesamtwirkungsquerschnitt für Desorientierung σ_k^G wie folgt definiert:

$$\sigma_k^G = \frac{k \cdot T}{\bar{v}_{rel}} \frac{\Delta\gamma_k}{\Delta p} \qquad (20)$$

Und entsprechend der Quenchquerschnitt σ_Q:

$$\sigma_Q = \frac{k \cdot T}{\bar{v}_{rel}} \frac{\Delta\gamma_o}{\Delta p} \qquad (21)$$

so lässt sich nach Gleichung (19) der eigentliche Wirkungsquerschnitt für den Abbau der jeweiligen Multipolkomponente durch desorientierende Stöße als Differenz aus den entsprechenden Gesamtwirkungsquerschnitt σ_k^G und dem Quenchquerschnitt σ_Q darstellen:

$$\sigma_k = \sigma_k^G - \sigma_Q \qquad (22)$$

Experimentell wird die Relaxationsrate γ_k bei verschiedenen Fremdgasdrucken bestimmt. Zwischen ihr und dem Fremdgasdruck besteht ein linearer Zusammenhang, so daß die Gesamtwirkungsquerschnitte σ_k^G, gemäß Gleichung (20) aus der Steigung der Geraden $\gamma_k = f(p)$ bestimmt werden konnten.

III. Experimenteller Aufbau und Messergebnisse

3.1 Anordnung zur Messung der Relaxationsraten γ_2 einer Ausrichtung der Quecksilberatome im $6\,^3P_2$-Zustand

Das Resonanzgefäß bestand aus einer zylindrischen Quarzzelle von 50mm Durchmesser und 50mm Länge. Es war über ein Kugelschliffventil mit einer Hochvakuumanlage verbunden. Der Quecksilbervorrat befand sich in einem seitlichen Ansatzstutzen am Resonanzgefäß. Mit Hilfe eines Thermostaten konnte der Quecksilbertropfen auf konstanter Temperatur gehalten werden. Dabei wurde dafür gesorgt, daß die Temperatur im Resonanzgefäß (T=309,5 K) stets größer war als die Temperatur des Quecksilbervorrats (T=301 K), sodaß die Teilchendichte des Quecksilbers durch die Temperatur des Quecksilbertropfens bestimmt wurde. Sie betrug bei der oben genannten Temperatur $N=7{,}8\cdot10^{13}$ cm^{-3}.

Die Resonanzzelle befand sich in einem statischen Magnetfeld B_o von $2{,}2\cdot10^{-4}$ T, das mit Hilfe eines Helmholtzspulenpaares erzeugt wurde. Zwischen den Helmholtzspulen waren zwei Quecksilberdampflampen angeordnet, womit die UV-Linie bei 253,7 nm und die blauviolette Linie bei 436 nm in Feldrichtung eingestrahlt wurden. Damit konnte im $6\,^3P_2$-Zustand der Quecksilberatome, wie unter 2.2 beschrieben, eine Ausrichtung erzeugt werden. Bei dieser

Anordnung der Quecksilberlampen kam es entscheidend darauf an, daß ein möglichst großer Raumwinkel ausgeleuchtet wurde. Dazu wurden "flächenhafte" Lichtquellen unmittelbar neben dem Resonanzgefäß aufgestellt. Diese Quecksilberlampen[+] bestanden jeweils aus mäanderförmig gebogenen dünnen Quarzrohren (Ø=6,5 mm) mit eingeschmolzenen Wolframelektroden. Damit konnte eine leuchtende Fläche von etwa 50×50 mm^2 erzielt werden. Die Quecksilberlampen wurden mit einer Gleichspannungsquelle betrieben. Die Brennspannung betrug etwa 300 V bei 120 mA Betriebsstrom.

Senkrecht zum statischen Magnetfeld B_o war eine kleine Spule zur Erzeugung des Hochfrequenzfeldes B_1 angebracht. Ein Sender, der auf die Resonanzfrequenz von ν_o=4,61 MHz (bei B_o=2,2·10^{-4} T) eingestellt war, lieferte über einen Hochfrequenzschalter den gepulsten HF-Strom. Dieser wurde in einem nachfolgenden HF-Verstärker, dessen Ausgangsleistung 0,1 W betrug, noch verstärkt, bevor er auf die HF-Spule gelangte. Zum Nachweis der Absorptionsänderung wurde mit einer elektrodenlosen Lampe, die mit einem Leistungssender bei 27,5 MHz betrieben wurde, die grüne Quecksilberlinie (λ =546 nm) eingestrahlt. Die Einstrahlrichtung lag sowohl senkrecht zum äußeren Magnetfeld B_o

---

+ Herrn Dr. U. Haas möchte ich für seine tatkräftige Mithilfe bei der Herstellung der Quecksilberlampen danken.

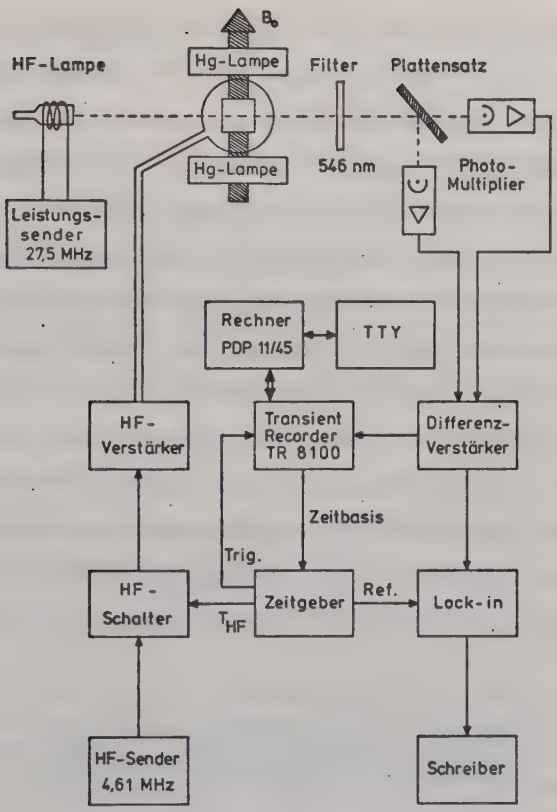


Abb. 4: Schematische Darstellung der experimentellen Anordnung zur Messung der Relaxationsraten γ_2.

als auch senkrecht zum Hochfrequenzfeld B_1. Mit einem Interferenzfilter wurde die grüne Linie aus dem Quecksilberspektrum herausgefiltert. Ein unter dem Brewsterwinkel aufgestellter Plattensatz trennte das unpolarisierte Licht in π- und in σ-Anteile auf, bevor es auf je einen Photomultiplier gelangte. Da die Absorptionsänderung bei Hochfrequenzübergängen $\Delta m = \pm 1$ für π-Licht

bzw. für σ-Licht verschiedene Vorzeichen hat /2/, wurden die beiden Multiplierströme in einem Differenzverstärker addiert. Vom Differenzverstärker gelangte das Signal zum einen auf den Transient Recorder TR 8100, zum anderen auf einen Monitor-Lock-in Detektor. Der Lock-in Detektor ermöglichte es, das Maximum des Resonanzsignals während der Messung auf einem Schreiber mitzuregistrieren. Außerdem konnten mit dieser Anordnung Resonanzkurven (Abb. 3) registriert werden, wenn bei fester Magnetfeldstärke B_0 die Frequenz des Hochfrequenzsenders variiert wurde. Zur Messung der Relaxationsraten γ_2 wurde der Hochfrequenzsender auf die Resonanzfrequenz eingestellt und das Zeitverhalten der Absorption nach dem Abschalten der HF-Einstrahlung beobachtet. Dazu

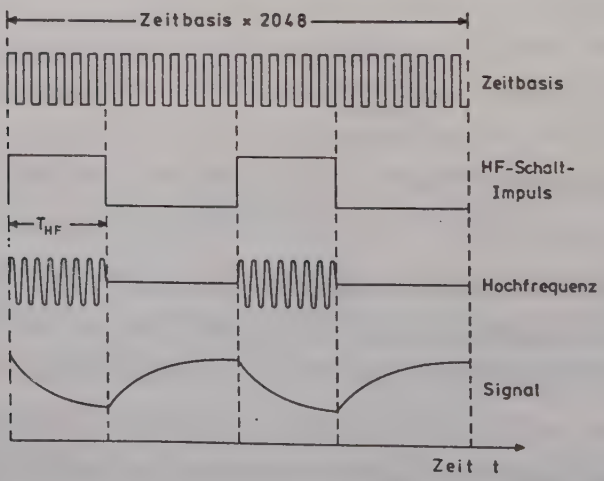


Abb. 5: Messzyklus.

lieferte der Transient Recorder eine quarzgenaue Zeitbasis, die der Verweilzeit pro Kanal im Transient Recorder (hier 0,5 µsec) entspricht. Mit dieser Zeitbasis wurde ein Zeitgeber angesteuert, der den Schaltimpuls für den Hochfrequenz-Schalter lieferte. Bei den hier beschriebenen Messungen betrug T_{HF} 58 µsec bzw. 28 µsec. Weiterhin lieferte der Zeitgeber auch den Triggerimpuls für den Transient Recorder und die Referenz für den Monitor-Lock-in Detektor. Nach jeder Messung wurde der Speicherinhalt des Transient Recorders ausgelesen und im Rechner PDP 11/45 aufaddiert. Eine ausführliche Beschreibung des Nachweisverfahrens findet sich bei Jacobson+ /26/, bzw. bei Linca /30/.

+ Herrn Dr. E. Jacobson möchte ich für die freundliche Überlassung der von ihm entwickelten Nachweiselektronik, sowie des Experimentierprogrammes "Relax" danken.

3.2 Ergebnisse zur Messung der Relaxationsraten γ_2 bei Fremdgasstößen

Zur Messung der Wirkungsquerschnitte für den Abbau einer Ausrichtung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilber durch Fremdgasstöße wurde das Zeitverhalten der Absorption der grünen Linie nach Abschalten der Hochfrequenzeinstrahlung für verschiedene Fremdgasdrucke beobachtet. In Abb. 6

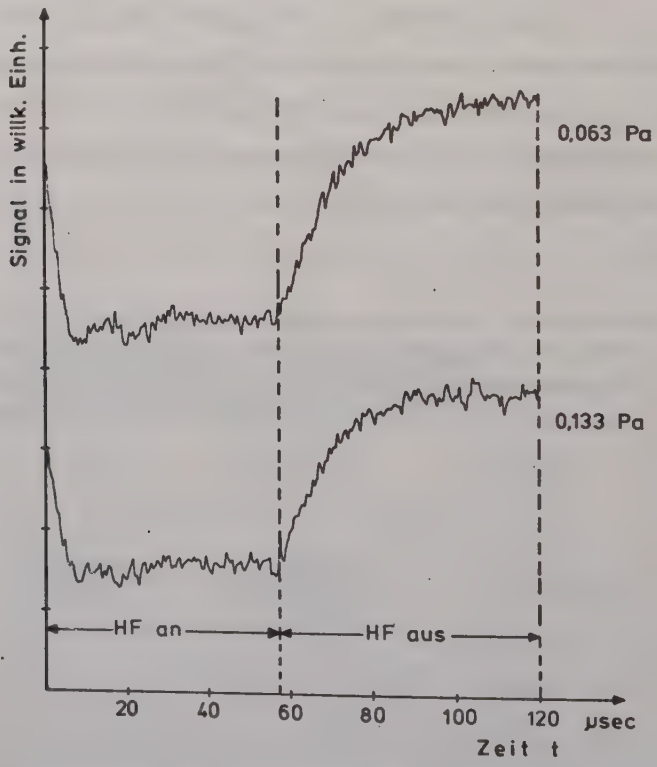


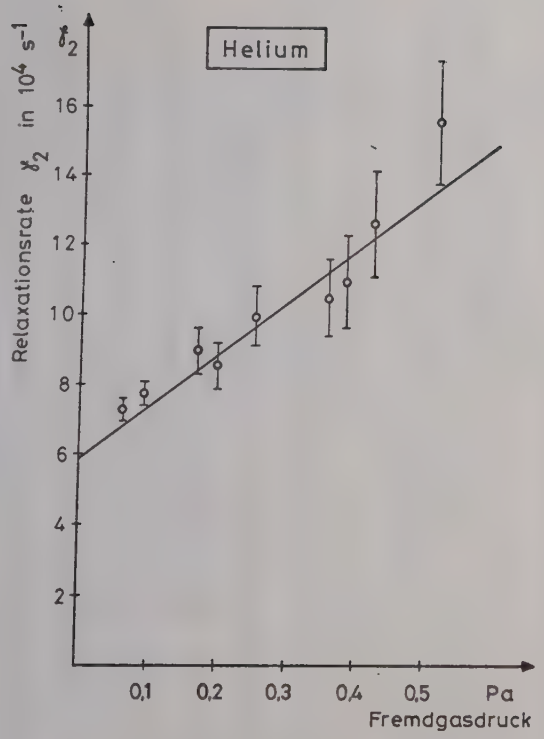
Abb. 6: Intensität des transmittierten Lichtes der grünen Quecksilberlinie als Funktion der Zeit bei Helium als Stoßpartner; Zeitbasis 0,5 µsec.

sind zwei typische Signalkurven bei 0,063 Pa und 0,133 Pa Helium dargestellt. Bei diesen Messungen wurden jeweils 500 000 Einzelmessungen aufaddiert. Die Meßzeit betrug jeweils 1 Stunde pro Meßkurve. Solche Messungen wurden für die Edelgase Helium, Neon, Argon, Krypton und Xenon, sowie für Stickstoff in einem Druckbereich zwischen 0,05 Pa und 0,5 Pa durchgeführt. Die Messung des Fremdgasdruckes erfolgte mit einem geeichten Manometer, das nach dem Prinzip der kapazitiven Druckmessung arbeitet. Dieses Verfahren hat den Vorteil, daß die Druckmessung gasartunabhängig ist. Weiterhin ist die Absolutgenauigkeit dieser Manometer sehr hoch, so geben die Hersteller für den verwendeten Meßkopf in dem oben genannten Druckbereich eine Absolutgenauigkeit von 1,5 % an. Diese Angabe wurde mit Hilfe eines Mc Leod Manometers überprüft. Sie konnte allerdings nur im Rahmen der geringeren Meßgenauigkeit des Mc Leod Manometers von etwa 5 % bestätigt werden.

Die Relaxationsraten γ_2 wurden ermittelt, indem an die Signalkurven von dem Zeitpunkt an, wo die Hochfrequenzeinstrahlung abgeschaltet war, also nach 58 µsec bzw. 28 µsec, eine Exponentialfunktion angepasst wurde[+]. In den Abb. 7 - 9 sind die so bestimmten Zeitkonstanten γ_2 als Funktion des Fremdgasdruckes für die Edelgase und für Stickstoff dargestellt. Die eingezeichneten Fehlerbalken entsprechen der, aus der Anpassung der Exponentialfunktion

---

[+] Herrn Dr. E. Jacobson möchte ich für das mir zur Verfügung gestellte Programm zur Anpassung von Exponentialfunktionen an die Meßkurven danken.



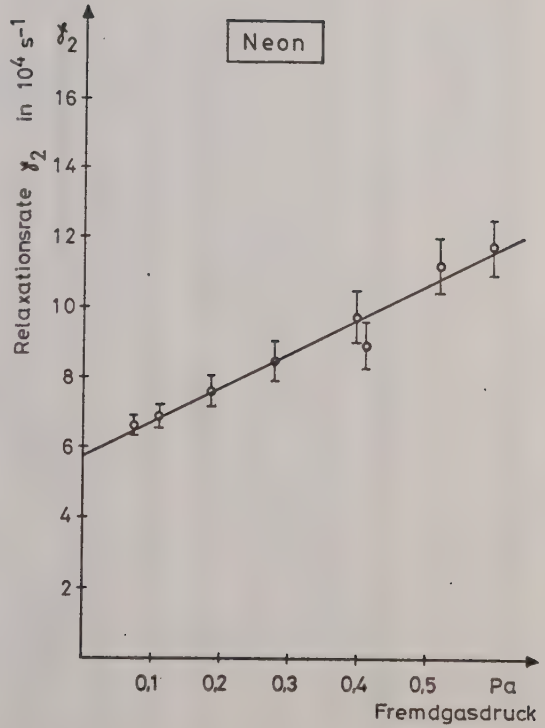
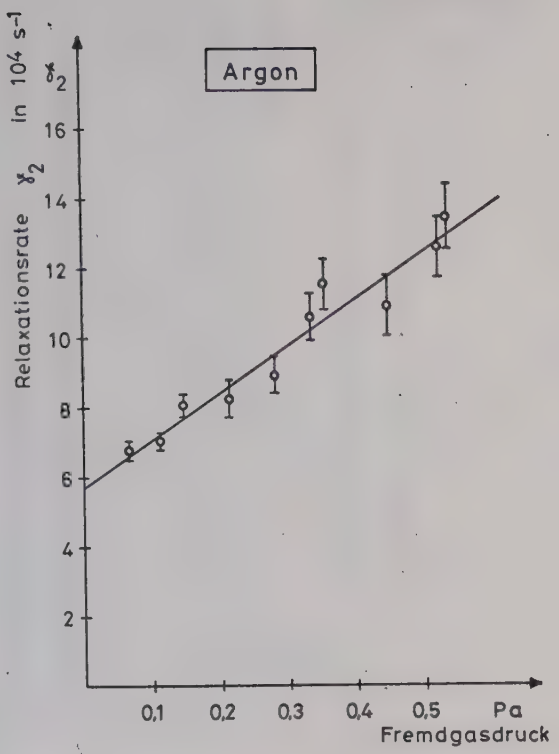


Abb. 7: Relaxationsrate γ_2 als Funktion vom Fremdgasdruck für Helium bzw. Neon.



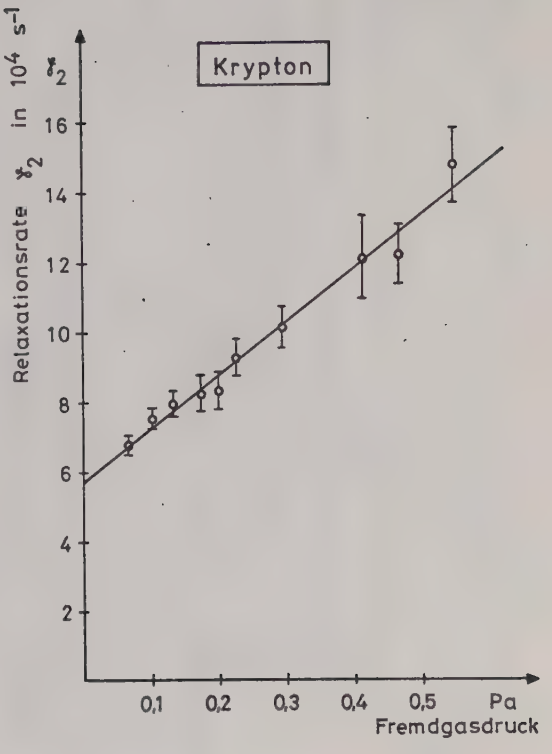
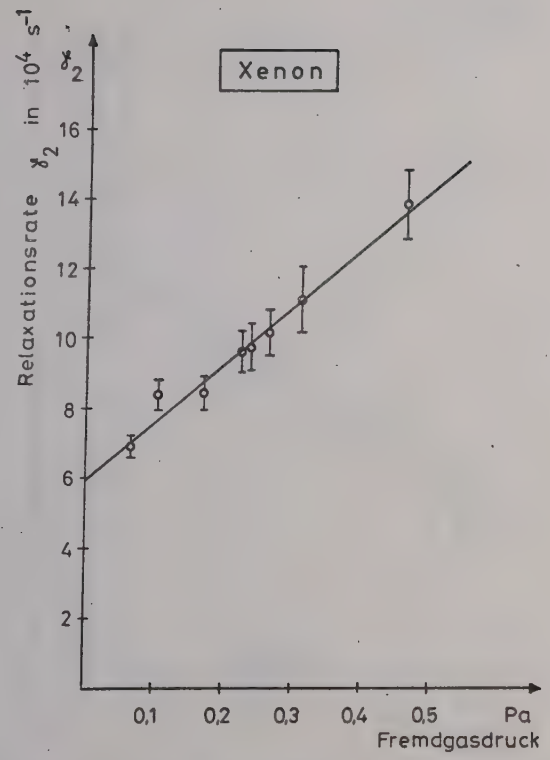


Abb. 8: Relaxationsrate γ_2 als Funktion vom Fremdgasdruck für Argon bzw. Krypton.



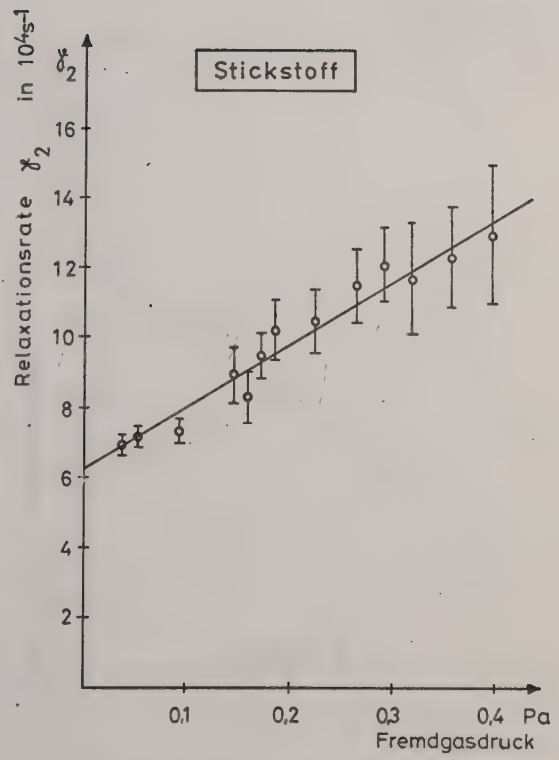


Abb. 9: Relaxationsrate γ_2 als Funktion vom Fremdgasdruck für Xenon bzw. Stickstoff.

an die Meßkurven ermittelten einfachen Standardabweichung. Nach Gleichung (20) erhält man aus der Steigung der Geraden $\gamma_2 = f(p)$ den Gesamtquerschnitt für Desorientierung σ_2^G bei Fremdgasstößen. Deshalb wurden für die gemessenen Druckabhängigkeiten der Relaxationsraten γ_2 Ausgleichsgeraden gerechnet und aus deren Steigungen die Gesamtquerschnitte σ_2^G bestimmt. In Tab. 1 sind die Ergebnisse dieser Messungen für die verschiedenen Fremdgase zusammengestellt.

	σ_2^G in 10^{-16} cm^2
He	60 ± 4
Ne	70 ± 6
Ar	131 ± 10
Kr	198 ± 12
Xe	244 ± 18
N_2	147 ± 12

Tab. 1: Gesamtwirkungsquerschnitte für Desorientierung σ_2^G.

Die angegebenen Fehler setzen sich aus der Standardabweichung, gewonnen aus der Anpassung der Meßwerte an eine Gerade, und einem Fehler in der Druckmessung von 1,5 % zusammen.

Im Hinblick auf die paramagnetischen Eigenschaften von Sauerstoff wurde versucht, auch Desorientierungsquerschnitte bei Quecksilber-Sauerstoffstößen zu messen. Dabei

wurde beobachtet, daß das Resonanzsignal, sobald Sauerstoff in der Resonanzzelle war, im Verlauf von etwa 10 Minuten sein Vorzeichen umkehrte. In Abb. 10 ist das Maximum der HF-Resonanzkurve (siehe Abb. 3) als Funktion der Zeit bei einem Sauerstoffdruck von 0,1 Pa aufgetragen. Anschließend bleibt diese Signalumkehr ca. 1 h erhalten. Diese Signalumkehr würde bedeuten, daß sich die

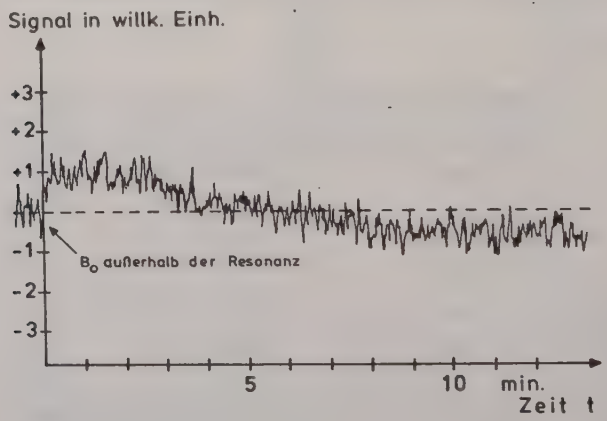


Abb. 10: Maximum der Resonanzkurve als Funktion der Zeit bei 0,1 Pa Sauerstoff; Lock-in-Zeitkonstante 1 sec.

Besetzungsverhältnisse im 6 $^3P_2$-Zustand der Quecksilberatome durch die Wechselwirkung mit dem Sauerstoff umkehren müssen. Wegen des schlechten Signal-Rauschverhältnisses wurden jedoch diese Stoßprozesse nicht weiter untersucht.

3.3 Anordnung zur Messung der Relaxationsraten γ_1 einer Orientierung der Quecksilberatome im 6 $^3P_2$-Zustand

Zur Erzeugung einer Orientierung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilber wurde die Interkombinationslinie bei 253,7 nm unpolarisiert senkrecht zum äußeren Magnetfeld B_o eingestrahlt. Die Anregung in der zweiten Stufe erfolgte dann mit der in Feldrichtung zirkular polarisiert eingestrahlten blauvioletten Linie bei 436 nm. Dazu wurde der in Abb. 11 dargestellte experimentelle Aufbau gewählt. Bei dieser Anordnung diente das von der Hochfrequenzentladungslampe emittierte Licht sowohl zur Anregung in der zweiten Stufe (6 $^3P_1$ - 7 $^3S_1$), als auch zum Nachweis (6 $^3P_2$ - 7 $^3S_1$). Die beiden Linien wurden mit

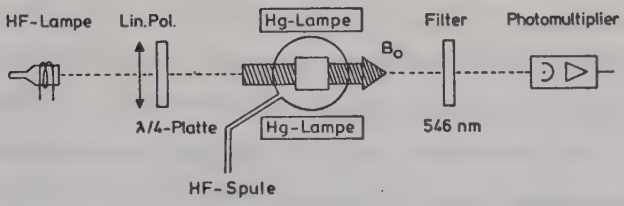


Abb. 11: Schematische Darstellung der experimentellen Anordnung zur Messung der Relaxationsraten γ_1.

einem Linearpolarisator und einem λ/4-Plättchen zirkular polarisiert und in Feldrichtung eingestrahlt. Auf der Nachweisseite befand sich ein Interferenzfilter für die grüne Quecksilberlinie, sodaß nur sie auf den Photomulti-

plier gelangte. Die Anregung in der ersten Stufe ($6\,^1S_0$-$6\,^3P_1$) erfolgte mit zwei Quecksilberlampen senkrecht zur Richtung des äußeren Magnetfeldes B_0. Da diese UV-Lampen das gesamte Quecksilberspektrum emittierten, also auch die blauviolette Linie, wurde neben der Orientierung im $6\,^3P_2$-Zustand, wegen der anisotropen Einstrahlung, auch eine geringe Ausrichtung erzeugt. Durch geeignete Einstellung der Lampenkühlung konnte zwar erreicht werden, daß die UV-Lampen die Interkombinationslinie, im Vergleich zum restlichen Quecksilberspektrum, sehr intensiv emittierten. Trotzdem war noch ein schwaches Untergrundsignal zu beobachten, das von der erzeugten Ausrichtung herrührte. Dieses Untergrundsignal hat für die Absorption von σ^+-Licht und σ^--Licht das gleiche Vorzeichen, während das von der Orientierung herrührende Hauptsignal bezüglich σ^+- bzw. σ^--Absorption verschiedenes Vorzeichen besitzt. Deshalb wurde zunächst versucht das Untergrundsignal durch eine Differenzmessung zu unterdrücken. Dazu mußten jedoch im Nachweisstrahl beide zirkularen Komponenten σ^+ und σ^- enthalten sein, während der Pumpstrahl nur eine Komponente, z.B. σ^+ enthalten durfte. Anregung und Nachweis mußten deshalb mit getrennten Lichtquellen erfolgen. Diese Auftrennung war aus experimentellen Gründen nicht ohne Intensitätsverlust in der Pumplinie möglich, was zu einer starken Verkleinerung der Signalamplitude führte. Aus diesem Grunde wurde die direkte Differenzmessung nicht weiter verfolgt. Anregung und Nachweis erfolgten weiterhin mit

einer Lichtquelle. Zur Bestimmung der Relaxationsraten γ_1 wurden zwei Messungen durchgeführt: Zunächst wurde das Gesamtsignal, das den Abbau der Orientierung und der Ausrichtung wiedergibt, gemessen. Dann wurde zwischen $\lambda/4$-Plättchen und Resonanzzelle ein weiteres Interferenzfilter für die grüne Linie (λ = 546 nm) in den Strahlen-

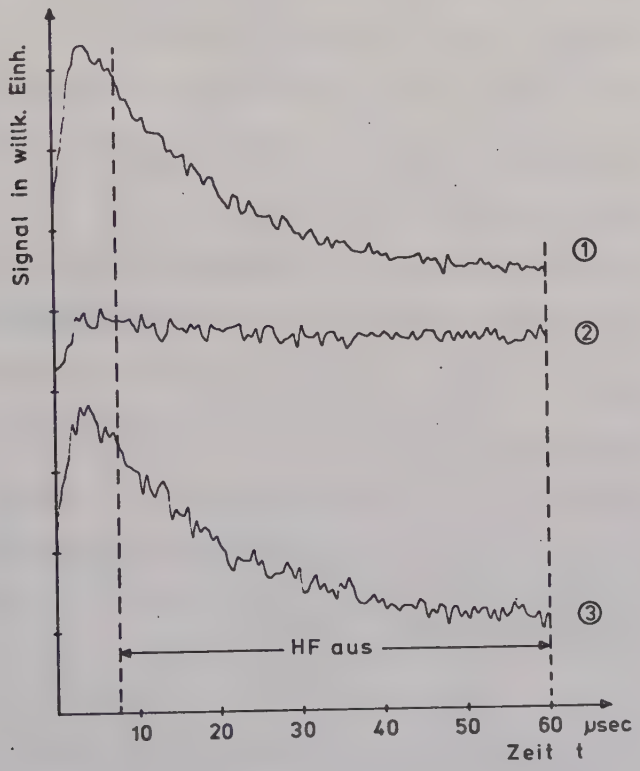


Abb. 12: Intensität des transmittierten Lichtes der zirkular polarisierten grünen Quecksilberlinie als Funktion der Zeit bei 0,122 Pa Neon; Zeitbasis 0,5 µsec
① : Gesamtsignal (Orientierung und Ausrichtung),
② : Untergrundsignal, ③ : Differenz aus ① u. ②.

gang gebracht, sodaß nun die blauviolette Pumplinie (λ = 436 nm) nur noch von den beiden UV-Lampen unpolarisiert eingestrahlt wurde. Mit dieser Anordnung konnte also der Einfluß der von den UV-Lampen erzeugten Ausrichtung im 6 $^3P_2$-Zustand isoliert beobachtet werden. Beide Signale wurden im Rechner PDP 11/45 auf Magnetplatte abgespeichert und später subtrahiert. Der elektronische Nachweis dieser Signale erfolgte mit dem gleichen Verfahren, wie es zur Messung der Relaxationsraten γ_2 (unter 3.1 beschrieben) verwendet wurde. In Abb. 12 sind solche Signalkurven für 0,122 Pa Neon dargestellt. Teilbild (1) zeigt dabei das Gesamtsignal, welches von von der Orientierung und der geringen Ausrichtung herrührt. Teilbild (2) zeigt das reine Untergrundsignal. Für beide Signale wurden jeweils $1{,}2 \cdot 10^6$ Messungen aufaddiert, die Hochfrequenzeinstrahlung wurde nach 8 µsec abgeschaltet. Die Meßzeit betrug pro Signal 2 h 15 min. Im Teilbild (3) ist dann die Differenz aus beiden Messungen dargestellt. An diese Differenzkurve wurde wiederum eine Exponentialfunktion angepaßt und daraus die Relaxationsraten γ_1 ermittelt.

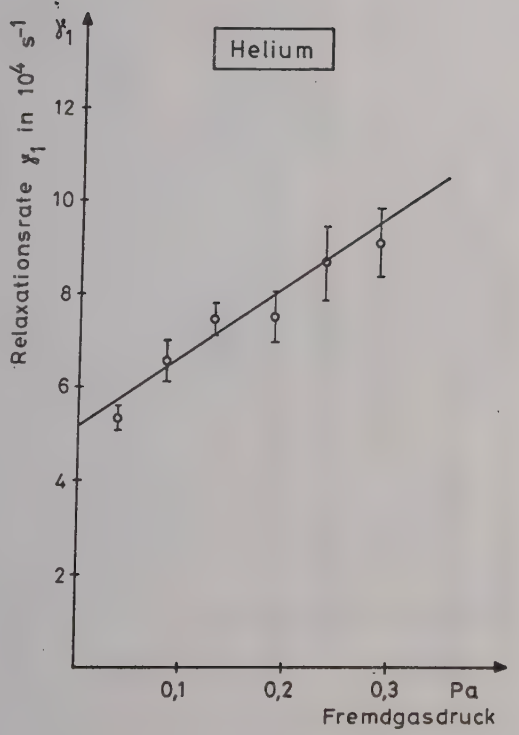
3.4 Ergebnisse zur Messung der Relaxationsraten γ_1 bei Fremdgasstößen

Zur Bestimmung der Gesamtwirkungsquerschnitte für Desorientierung σ_1^G bei Stößen von Quecksilberatomen im $6\,^3P_2$-Zustand mit den Edelgasen und mit Stickstoff, wurden die Relaxationsraten γ_1 im Druckbereich von 0,05 Pa bis 0,4 Pa gemessen. In den Abb. 13 - 15 sind diese Relaxationsraten als Funktion vom Fremdgasdruck aufgetragen. Aus der Steigung der Ausgleichsgeraden konnte dann nach Gleichung (20) der Gesamtwirkungsquerschnitt für den Abbau einer Orientierung ermittelt werden. Die auf diese Weise erhaltenen Ergebnisse sind in Tab. 2 zusammengestellt.

	σ_1^G in 10^{-16} cm^2
He	47 ± 6
Ne	58 ± 10
Ar	104 ± 12
Kr	141 ± 15
Xe	207 ± 27
N_2	136 ± 19

Tab. 2: Gesamtwirkungsquerschnitt für Desorientierung σ_1^G.

Die angegebenen Fehler entsprechen der einfachen Standardabweichung und einem Fehler bei der Druckmessung von 1,5 %.



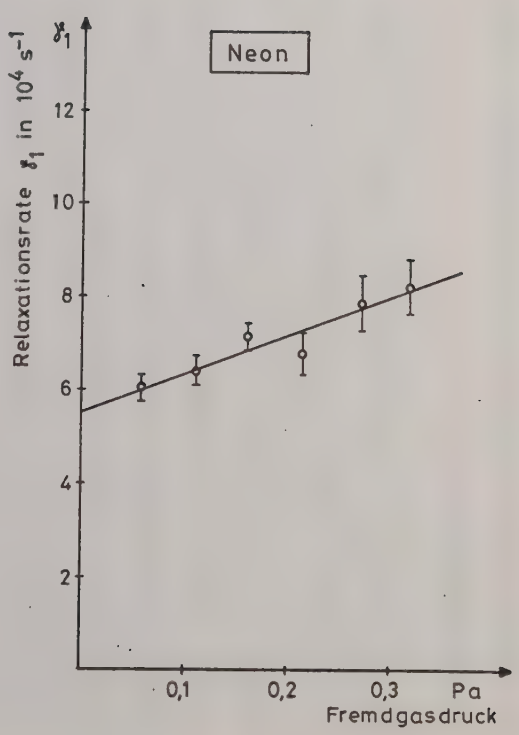
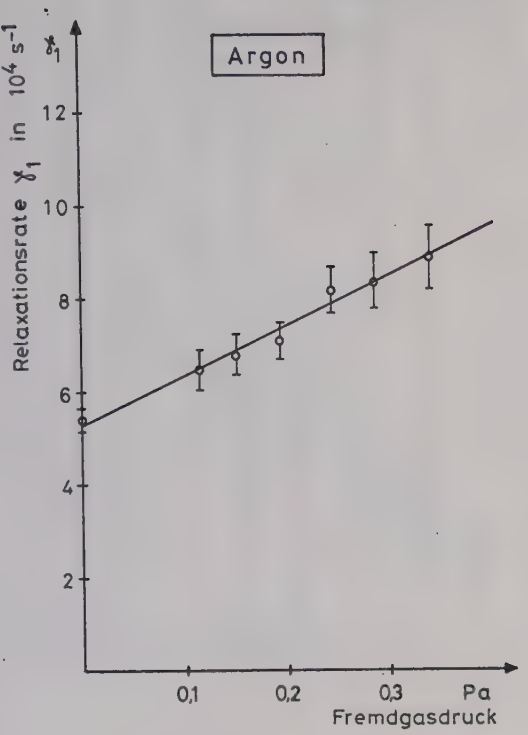


Abb. 13: Relaxationsrate γ_1 als Funktion vom Fremdgasdruck bei Helium, bzw. Neon.



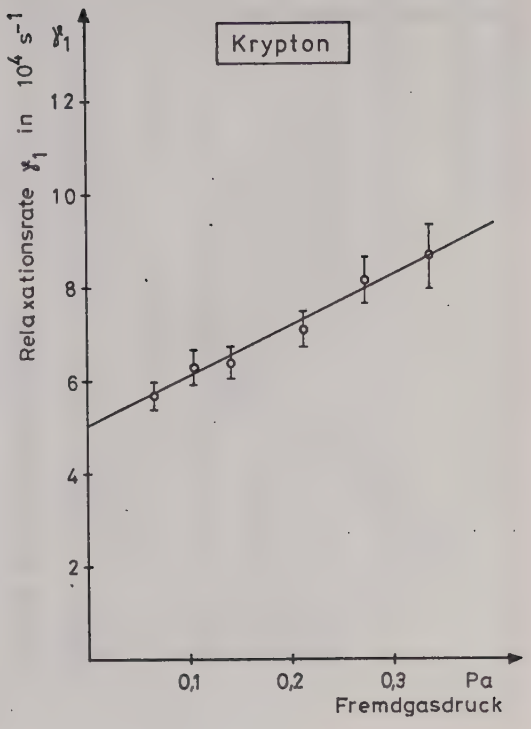
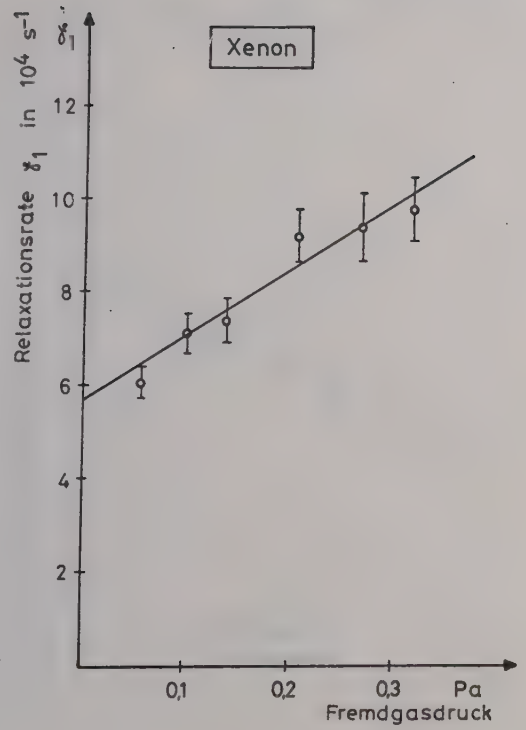


Abb. 14: Relaxationsrate γ_1 als Funktion vom Fremdgasdruck bei Argon, bzw. Krypton.



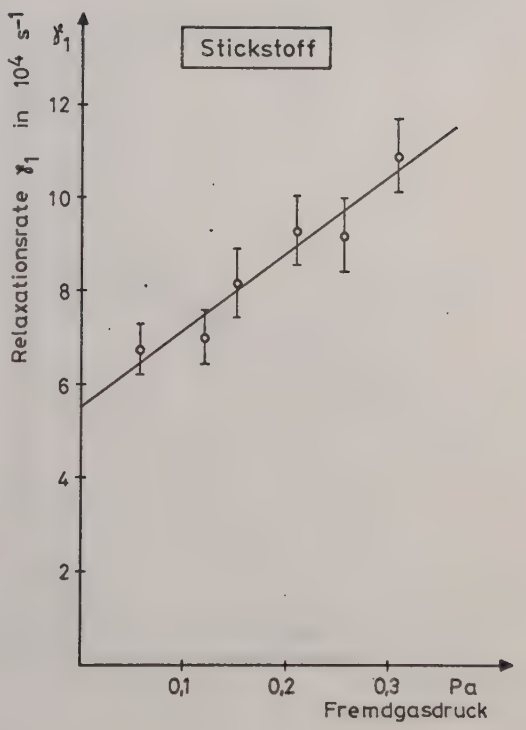


Abb. 15: Relaxationsrate γ_1 als Funktion vom Fremdgasdruck bei Xenon, bzw. Stickstoff.

3.5 Bestimmung der Quenchlebensdauer des 6 $^3P_2$-Zustandes von Quecksilber

Die Lebensdauer des metastabilen 6 $^3P_2$-Zustandes wird durch Quenchprozesse begrenzt. So führen z.B. Stöße der angeregten Quecksilberatome mit den Wänden der Resonanzzelle zu einer endlichen Lebensdauer. Weiterhin kann der 6 $^3P_2$-Zustand durch Quecksilber-Quecksilberstöße, sowie durch Quecksilber-Fremdgasstöße zerstört werden. Der Einfluß der Wandstöße, sowie der Quecksilber-Quecksilberstöße auf die Lebensdauer wird durch die Gefäßdimensionen, bzw. durch die Teilchendichte des Quecksilbers bestimmt. Solange die Quecksilberteilchendichte konstant gehalten wird, führen diese beiden Effekte zu einer konstanten Lebensdauer τ_o, da in dem hier betrachteten Fremdgasdruckbereich (bis 0,4 Pa) der Einfluß des Fremdgasdruckes auf die Diffusionsgeschwindigkeit der Quecksilberatome zu den Wänden vernachlässigt werden kann. Die Quecksilber-Fremdgasstöße ergeben eine Quenchrate $\gamma_o = 1/\tau_o$, die i.a. vom Fremdgasdruck abhängig ist. Aus dieser Abhängigkeit kann nach Gleichung (21) der Quenchquerschnitt σ_Q bestimmt werden.

Die Messung der Quenchrate γ_o kann erfolgen, indem die Anregungslampe periodisch ein-und ausgeschaltet wird. Nach dem Ausschalten der Anregungslampe werden keine Atome mehr in den $^3P_2$-Zustand angeregt und der Zerfall

des Zustandes führt zu einem exponentiellen Abklingen der Absorption der grünen Linie (λ = 546 nm). Aus Intensitätsgründen mußten zur stufenweisen Anregung des $6\,^3P_2$-Zustandes zwei UV-Lichtquellen verwendet werden. Da es jedoch schwierig war beide Lampen "gleichzeitig" abzuschalten, wurde nur eine Lampe periodisch ein- und ausgeschaltet, während die andere Anregungslampe kontinuierlich betrieben wurde. Auch diese Modulation der Intensität führt zu einem exponentiellen Abklingen der Absorption der grünen Linie. Aus der Zeitkonstante dieser Exponentialfunktion wurde dann die Quenchrate γ_o bestimmt.

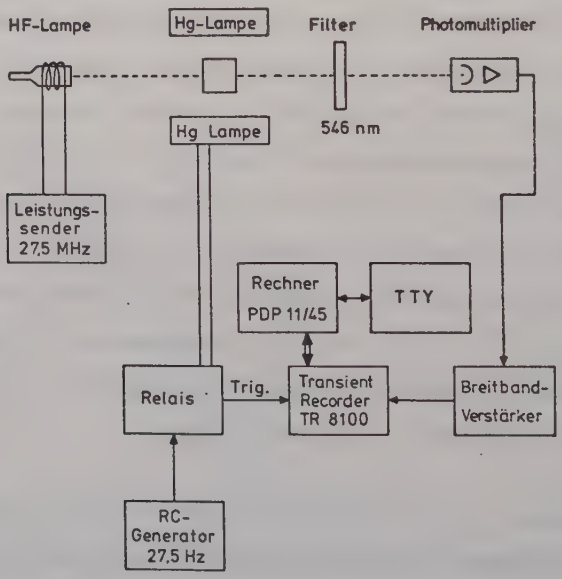


Abb. 16: Experimenteller Aufbau zur Messung der Quenchraten γ_o im $6\,^3P_2$-Zustand von Quecksilber.

Zur Messung der Quenchlebensdauer τ_o des $6\,^3P_2$-Zustandes wurde die unter 3.1 beschriebene Apparatur wie folgt modifiziert: Eine der beiden Quecksilberlampen wurde mit Hilfe eines Schaltrelais, das über einen Emitterfolger mit einem RC-Generator (Frequenz 27,5 Hz) verbunden war, periodisch kurzgeschlossen. Damit gelang es die Quecksilberlampe mit Anstiegszeiten von etwa 0,1 µsec periodisch ein- und auszuschalten. Die an der Lampe anliegende Brennspannung lieferte über einen Spannungsteiler direkt den Triggerimpuls für den Transient Recorder TR 8100. Zum Nachweis der Absorptionsänderung wurde die Resonanzzelle, wie oben beschrieben, mit dem Licht einer Hochfrequenzentladungslampe durchstrahlt. Mit einem Photomultiplier konnte dann die Änderung der Absorption der grünen Quecksilberlinie registriert werden. Vom Multiplier gelangte das Absorptionssignal über einen Breitbandverstärker auf den Eingang des Transient Recorders TR 8100, der mit dem Abschaltimpuls der Anregungslampe getriggert wurde. Nach jeder Messung wurde der Speicherinhalt des Transient Recorders im Rechner PDP 11/45 aufaddiert. Mit dieser Anordnung konnte das Zeitverhalten der Absorption der grünen Quecksilberlinie nach dem Abschalten der Anregungslampe direkt beobachtet werden. In Abb. 17 ist eine typische Meßkurve dargestellt. Für dieses Quenchsignal wurden insgesamt 30 000 Messungen aufaddiert; die Meßzeit betrug etwa

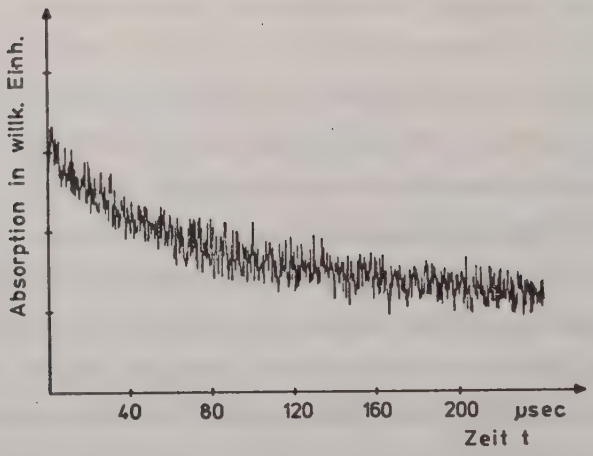


Abb. 17: Quenchsignal bei 0,17 Pa Argon; Zeitbasis 0,2 µsec.

18 Minuten. An die Quenchsignale wurden Exponentialfunktionen angepasst und aus der Zeitkonstanten die Quenchrate γ_o ermittelt.

3.6 Quenchquerschnitte

Zur Messung der Quenchquerschnitte σ_Q wurden die Quenchraten γ_o für verschiedene Fremdgasdrucke bis 0,4 Pa bestimmt. Abb. 18 zeigt die Ergebnisse dieser Messungen für die Edelgase. Wie man sieht, wird der 6 $^3P_2$-Zustand durch die Edelgase in diesem Druckbereich nicht merklich gequencht. In Abb. 19 ist die Quenchrate γ_o als Funktion vom Fremdgasdruck für Sauerstoff und für Stickstoff dargestellt. Die aus der Steigung der Ausgleichsgeraden nach Gleichung (21) berechneten Quenchquerschnitte σ_Q sind in Tab. 3 angegeben.

	σ_Q in 10^{-16} cm^2
Edelgase	$\sigma_Q \approx 0$
N_2	23 ± 2
O_2	81 ± 9

Tab. 3: Quenchquerschnitte σ_Q.

Bei Sauerstoff ist der Quenchquerschnitt recht groß. Allerdings fanden auch Barrat et al. /31/, sowie Deech et al. /32/ für den 6 $^3P_1$-Zustand ähnlich große Quenchquerschnitte.

Für reine Quecksilber-Quecksilberstöße erhält man bei einer Quecksilberteilchendichte von $N = 7{,}8 \cdot 10^{13}$ cm^{-3}

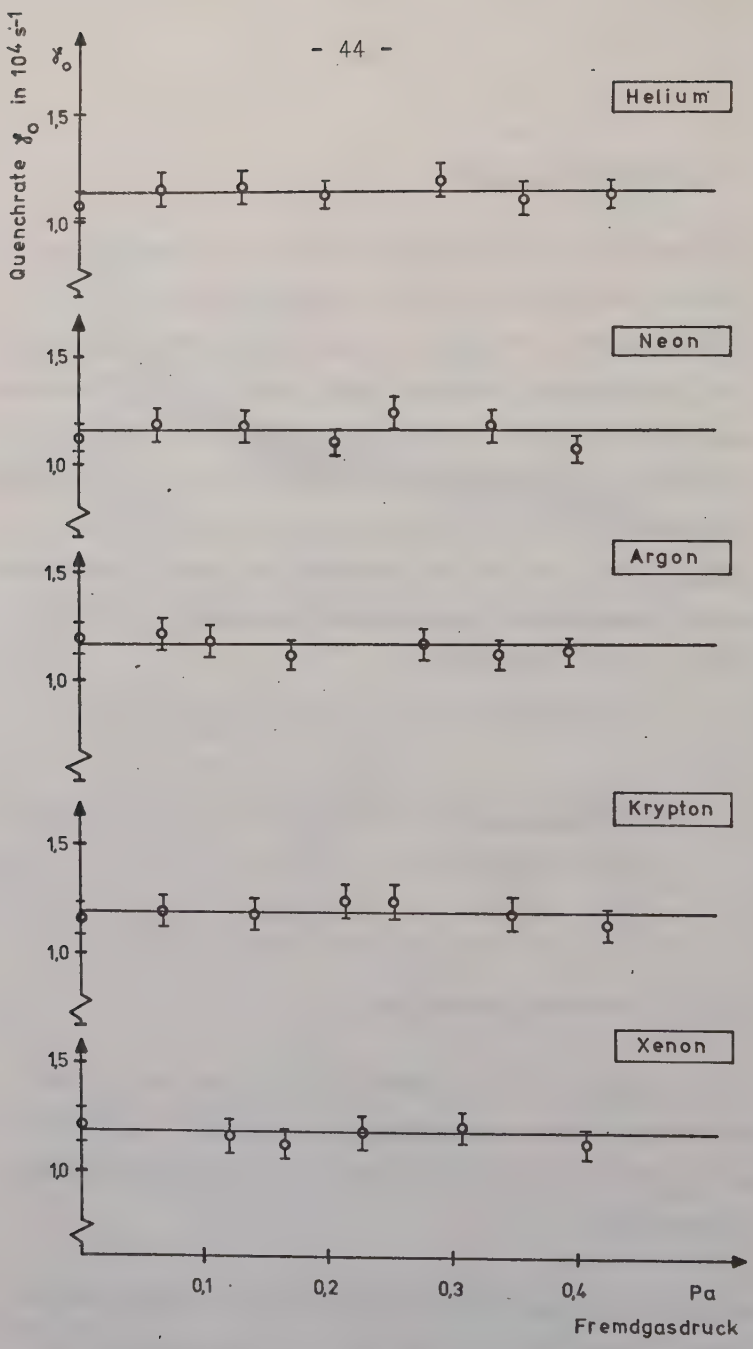


Abb. 18: Quenchrate γ_o als Funktion vom Fremdgasdruck für die Edelgase.

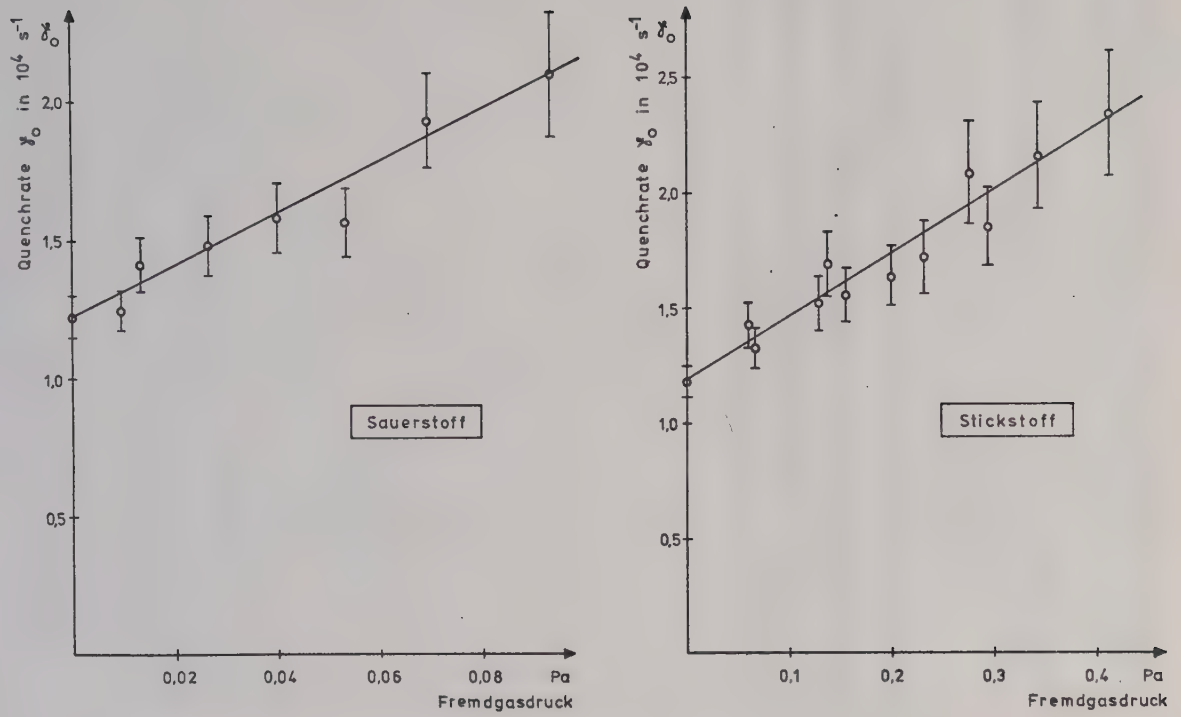


Abb. 19: Quenchrate γ_o als Funktion vom Fremdgasdruck für Sauerstoff, bzw. Stickstoff.

(T_{Hg}=28 °C) eine Quenchrate von:

$$\gamma_o=(1,18 \pm 0,02)\cdot 10^4 \text{ sec}^{-1}$$

Daraus ergibt sich für die mittlere Quenchlebensdauer des 6 $^3P_2$-Zustandes der folgende Wert:

$$\tau_o=1/\gamma_o=(84,7 \pm 1,5) \text{ µsec}$$

Dieses Ergebnis ist vernünftig, denn τ_o entspricht etwa der freien Flugzeit zu den Wänden. D.h. die Quenchprozesse werden hier wohl im wesentlichen durch Wandstöße verursacht.

3.6 Wirkungsquerschnitte für Quecksilber-Quecksilber-Stöße

In einem weiteren Experiment wurden noch die Wirkungsquerschnitte für den Abbau einer Orientierung bzw. einer Ausrichtung im 6 $^3P_2$-Zustand bei Quecksilber-Quecksilberstößen untersucht. Dazu wurden die Relaxationsraten γ_2 und γ_1 sowie die Quenchrate γ_o bei verschiedenen Quecksilberteilchendichten gemessen. Die Teilchendichte konnte über den Sättigungsdampfdruck eingestellt werden,

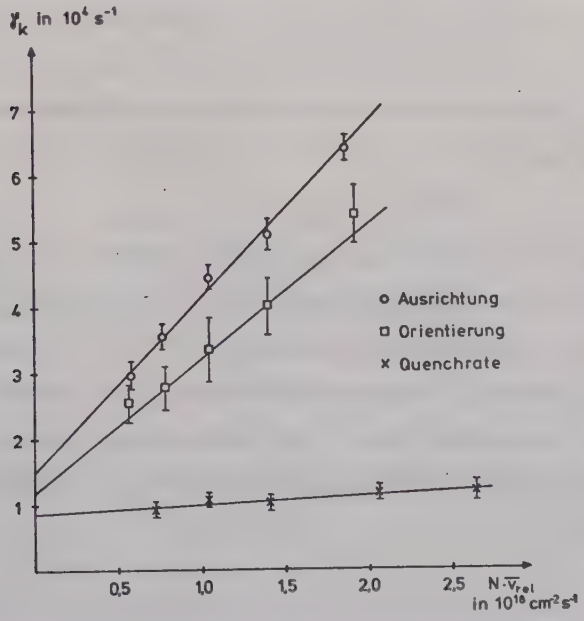


Abb. 20: Relaxationsraten γ_1 und γ_2, sowie Quenchrate γ_o als Funktion von $N \cdot \overline{v}_{rel}$ bei Quecksilber-Quecksilberstößen.

wobei die Temperatur des Quecksilbervorrates zwischen 12 °C und 28 °C variiert wurde. Die Resonanzzelle befand sich dabei stets auf 36,5 °C. In Abb.20 sind die Relaxationsraten γ_1 und γ_2, sowie die Quenchrate γ_o als Funktion von $N \cdot \bar{v}_{rel}$ aufgetragen. Aus der Steigung dieser Geraden wurden nach Gleichung (19) die Wirkungsquerschnitte σ_1 und σ_2 für den Abbau der jeweiligen Multipolkomponente bestimmt. Es ergaben sich die folgenden Werte:

$$\sigma_1 = (199 \pm 21)\ 10^{-16}\ cm^2$$

$$\sigma_2 = (252 \pm 21)\ 10^{-16}\ cm^2$$

Das Verhältnis der beiden Wirkungsquerschnitte ergibt sich zu:

$$\sigma_1/\sigma_2 = 0{,}79 \pm 0{,}13$$

Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit dem von Jacobson /6/ angegebenen Wert von $\sigma_1/\sigma_2 = 0{,}76 \pm 0{,}07$, der aus den Relaxationsraten $\gamma_2(F)$ des $6\ ^3P_2$-Zustandes des Isotops ^{199}Hg ermittelt wurde. Damit konnte das dort verwendete Modell der Entkopplung zwischen Hüllendrehimpuls $\vec{J}$ und Kernspin $\vec{I}$ während des Stoßes bestätigt werden.

3.8 Vergleich der Wirkungsquerschnitte mit anderen Messungen

Die Wirkungsquerschnitte σ_k für den Abbau der jeweiligen Multipolkomponente (k=1 Orientierung; k=2 Ausrichtung) berechnen sich nach Gleichung (22) aus der Differenz der entsprechenden Gesamtquerschnitte σ_k^G und der Quenchquerschnitte σ_Q. Für die Edelgase sind die Wirkungsquerschnitte σ_k identisch mit den Gesamtwirkungsquerschnitten σ_k^G, da bei den Edelgasen die Quenchquerschnitte vernachlässigt werden können. In Tab. 4 sind die Wirkungsquerschnitte σ_1 für den Abbau einer Orientierung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilber bei Stößen mit Edelgasen und mit Stickstoff zusammengestellt.

	diese Arbeit	Lahaye /8/
He	47 ± 6	49 ± 8
Ne	58 ± 10	58 ± 8
Ar	104 ± 12	114 ± 17
Kr	141 ± 15	159 ± 24
Xe	207 ± 27	164 ± 30
N_2	113 ± 19	-

Tab. 4: Wirkungsquerschnitte σ_1 (in 10^{-16} cm^2) für den Abbau einer Orientierung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilberatomen.

Die Wirkungsquerschnitte σ_2 für den Abbau einer Ausrichtung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilber werden in Tab. 5 mit anderen Messungen für optische Anregung /5,8/, sowie für Elektronenstoßanregung /3,4,7/ verglichen.

	diese Arbeit	Barrat et al./5/	Lahaye /8/	Tittel /3/	Baumann et al./4,7/
He	60 ± 4	54 ± 10	60 ± 10	71 ± 10	63 ± 7
Ne	70 ± 6	68 ± 10	74 ± 10	82 ± 10	84 ± 8
Ar	131 ± 10	129 ± 15	129 ± 17	153 ± 12	179 ± 20
Kr	198 ± 12	182 ± 22	181 ± 25	204 ± 28	238 ± 27
Xe	244 ± 18	239 ± 32	202 ± 30	291 ± 28	342 ± 34
N_2	124 ± 12	-	-	-	104 ± 13

Tab. 5: Wirkungsquerschnitte σ_2 (in 10^{-16} cm^2) für den Abbau einer Ausrichtung im 6 $^3P_2$-Zustand von Quecksilberatomen.

Die Ergebnisse dieser Arbeit stimmen gut überein mit den Ergebnissen von Barrat,Casalta /5/ und Lahaye /8/, die ebenfalls mit optischer Anregung arbeiteten. Nur zu den Messungen von Lahaye an Xenon besteht eine gewisse Abweichung, während der Wert für Xenon aus dieser Arbeit mit den Ergebnissen von Barrat, Casalta gut übereinstimmt. Die Messungen mit Elektronenstoßanregung /3,4,7/

liefern systematisch größere Werte für die Wirkungsquerschnitte bei den Edelgasen. Dieser Unterschied ist möglicherweise auf Raumladungseffekte in der Gasentladung zurückzuführen. Oft ist der Vergleich der Verhältnisse von Wirkungsquerschnitten aufschlußreicher als der Vergleich der Absolutwerte. In Tab. 6 sind solche Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte $\sigma_2(^3P_2)/\sigma_2(^3P_1)$ für Quecksilber und Blei angegeben. Die Quecksilberwerte $\sigma_2(^3P_2)$ stammen aus der vorliegenden Arbeit, die entsprechenden Werte $\sigma_2(^3P_1)$ wurden bei Barrat et al. /31/ entnommen. Die Messungen an Blei wurden von Gibbs /32/ durchgeführt.

	Hg $\frac{\sigma_2(^3P_2)}{\sigma_2(^3P_1)}$	Pb $\frac{\sigma_2(^3P_2)}{\sigma_2(^3P_1)}$
He	1,50 ± 0,18	1,33 ± 0,13
Ne	1,52 ± 0,20	1,30 ± 0,16
Ar	1,58 ± 0,16	1,17 ± 0,15
Kr	1,61 ± 0,15	1,20 ± 0,19
Xe	1,44 ± 0,14	1,30 ± 0,21
N_2	0,92 ± 0,13	1,21 ± 0,15

Tab. 6: Verhältnisse $\sigma_2(^3P_2)/\sigma_2(^3P_1)$ für Quecksilber und Blei.

Hier zeigt das Verhältnis $\sigma_2(^3P_2)/\sigma_2(^3P_1)$ für Stickstoff-Quecksilberstöße eine bemerkenswerte Abweichung, während sich der Stickstoff bei den Verhältnissen für Blei /32/ gleich verhält, wie die Edelgase.

IV. Vergleich der Meßergebnisse mit entsprechenden theoretischen Ergebnissen

Bei der theoretischen Behandlung der Desorientierung angeregter Atome durch Stöße mit Atomen im Grundzustand werden üblicherweise eine Reihe von Annahmen bzw. Näherungen gemacht /12-17/: Zunächst wird vorausgesetzt, daß die Zeitentwicklung des atomaren Systems langsam erfolgt, verglichen mit der Stoßzeit T_c. Weiterhin wird angenommen, daß der Stoß schnell erfolgt, verglichen mit der Relaxationszeit ($T_c \ll 1/\gamma_k$). Beide Annahmen sind gut erfüllt, da sowohl die Larmorperiode als auch die Relaxationszeiten in der Größenordnung von 10^{-7} - 10^{-5} sec liegen, während die Stoßzeit T_c etwa 10^{-12} sec beträgt.

Eine weitere Annahme besteht in der Wahl des Wechselwirkungspotentials zwischen den angeregten Atomen und den Stoßpartnern. Hier gibt es eine Reihe von Arbeiten, welche die Desorientierung angeregter Atome in Zuständen mit J=1 und J=2 durch Stöße, mit Hilfe der elektrostatischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung beschreiben /12-17/. Dieser Potentialansatz divergiert jedoch für kleine Stoßparameter b, sodaß für kleine Stoßparameter Näherungsannahmen für die Depolarisationswahrscheinlichkeit notwendig werden. So nimmt Omont /13/ z.B. bei seiner "asymptotischen Näherung" an, daß für Stöße mit einem Stoßparameter b, der kleiner ist als ein bestimmtes b_o, alle Stöße voll-

ständig depolarisierend sind. Aus der Theorie von Omont leiteten Carrington und Corney /15/ die folgende Formel für die Wirkungsquerschnitte σ_k für desorientierende Stöße ab:

$$\sigma_k = K(J,k) \left[\frac{\pi \cdot p^2 \cdot \alpha}{(4\pi\varepsilon_o)^2 16 \cdot \hbar \cdot \Delta E} \right]^{2/5} \frac{\langle v^{3/5} \rangle}{\langle v \rangle} \qquad (23)$$

Dabei ist K(J,k) eine numerische Konstante, die von der Multipolordnung k und der Gesamtdrehimpulsquantenzahl J des betreffenden Zustandes abhängt. Die Größe p^2 ist das Matrixelement des Quadrates des elektrischen Dipoloperators für den Grundzustand der Fremdgasatome:

$$p^2 = e^2 < {}^1S_o | \Sigma r_i^2 | {}^1S_o > \qquad (24)$$

α ist das reduzierte Matrixelement des Operators der Polarisierbarkeit P für den angeregten $6\,{}^3P_2$-Zustand von Quecksilber:

$$\alpha = < 6\,{}^3P_2 | P | 6\,{}^3P_2 > \qquad (25)$$

mit:

$$P = e^2 \{ 3(\Sigma z_i)^2 - (\Sigma r_i)^2 \} \qquad (26)$$

und ΔE ist eine mittlere Anregungsenergie. Für eine Maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung der Stoßpartner läßt sich der Ausdruck $\langle v^{3/5} \rangle / \langle v \rangle$ mit Hilfe der Γ-Funktion folgendermaßen darstellen:

$$\frac{\langle v^{3/5} \rangle}{\langle v \rangle} = \Gamma\left(\frac{9}{5}\right) \left[\frac{2kT}{m_o} \left(\frac{1}{M_{Hg}} + \frac{1}{M_{Gas}} \right) \right]^{-1/5} \qquad (27)$$

$$= 0{,}9775 \langle v \rangle^{-2/5}$$

Zur Berechnung von p^2 und α wurden Slaterwellenfunktionen nach Clementi /34,35/ verwendet. Für ΔE wurde die Ionisationsenergie der Edelgase, sowie für Stickstoff die Dissoziationsenergie eingesetzt. In Tab. 7 werden die nach Gleichung (23) berechneten Werte für die Wirkungsquerschnitte $(\sigma_2)_{th}$ für den Abbau einer Ausrichtung mit den in der vorliegenden Arbeit experimentell bestimmten Werten $(\sigma_2)_{ex}$ verglichen.

	He	Ne	Ar	Kr	Xe	N_2
$(\sigma_2)_{th}$	34	74	149	198	255	121
$(\sigma_2)_{ex}$	60±4	70±6	131±10	198±12	244±18	124±12

Tab. 7: Nach Carrington u. Corney /15/ berechnete Wirkungsquerschnitte $(\sigma_2)_{th}$ und Ergebnisse der vorliegenden Arbeit $(\sigma_2)_{ex}$ jeweils in 10^{-16} cm^2.

Mit Ausnahme von Helium erhält man eine recht gute Übereinstimmung zwischen theoretischen und experimentellen Werten. Jedoch darf diese Übereinstimmung der Absolutwerte der Wirkungsquerschnitte nicht überbewertet werden. Sie ist eher als zufällig zu bezeichnen, denn die Größen p^2 und α sind, wegen der Verwendung von Slaterwellenfunktionen nur in grober Näherung bekannt. Zum Test der Näherung für kleine Stoßparameter ist es deshalb sinnvoller die Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte für den Abbau einer Orientierung σ_1 zu denen für den Abbau einer Ausrichtung σ_2 mit den entsprechenden theoretischen

Werten zu vergleichen, da bei der Verhältnisbildung die unsicheren Werte p^2, α und ΔE herausfallen. In Tab. 8 sind die experimentell ermittelten Verhältnisse σ_1/σ_2 für die verschiedenen Gase zusammengestellt.

	σ_1/σ_2
He	0,78 ± 0,11
Ne	0,83 ± 0,16
Ar	0,79 ± 0,10
Kr	0,71 ± 0,09
Xe	0,85 ± 0,13
N_2	0,91 ± 0,18

Tab. 8: Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte σ_1/σ_2.

Die Näherungsannahmen über die Wahrscheinlichkeit für Desorientierung bei kleinen Stoßparametern gehen direkt in den Wert von K(J,k) ein, d.h. das Verhältnis σ_1/σ_2 ist ein guter Test für diese Näherungsannahmen, denn aus Gleichung (23) folgt unmittelbar für σ_1/σ_2:

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_2} = \frac{K(J,1)}{K(J,2)} \qquad (28)$$

Nach Carrington u. Corney /15/ erhält man den folgenden Wert für das Verhältnis: σ_1/σ_2=0,837. Andere Autoren erhalten mit anderen Ansätzen für die Desorientierungswahrscheinlichkeit bei kleinen Stoßparametern geringfügig abweichende Ergebnisse. So geben Wang u. Tomlinson/16/

für σ_1/σ_2 den Wert 0,882 an. Petrashen und Rebane /17/ erhielten σ_1/σ_2=0,732. In Abb. 21 sind die in der vorliegenden Arbeit ermittelten Wirkungsquerschnitte σ_1 und σ_2 aufgetragen. Die eingezeichneten Linien entsprechen den verschiedenen theoretischen Verhältnissen σ_1/σ_2: ---Wang u. Tomlinson, —— Carrington u. Corney, —·— Petrashen u. Rebane.

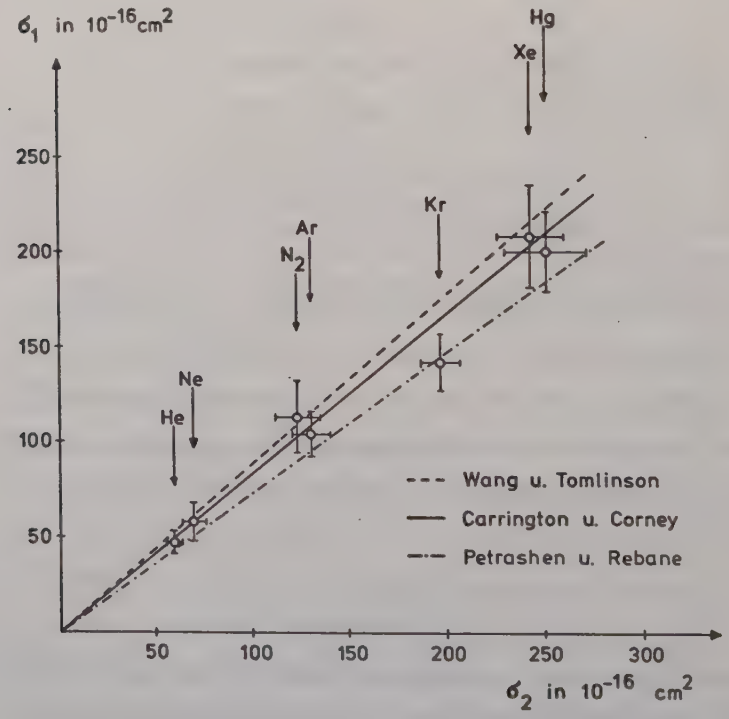


Abb. 21: Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit den theoretischen Werten für σ_1/σ_2.

Die Meßgenauigkeit der in Tab. 8 angegebenen experimentellen Verhältnisse σ_1/σ_2 reicht allerdings nicht aus, um zwischen diesen verschiedenen theoretischen Werten für σ_1/σ_2 differenzieren zu können.

Weitere Information über das Wechselwirkungspotential beim Stoß könnte die Messung der Geschwindigkeitsabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte bringen. Für die Dipol-Dipolwechselwirkung sind die Wirkungsquerschnitte (nach Gleichung(27) proportional zu $< v >^{-2/5}$. Allgemein gilt für die Geschwindigkeitsabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte σ_k/36/:

$$\sigma_k \sim < v >^{-\frac{2}{n-1}} \qquad (29)$$

wenn ein Potential der Form $V(r) \sim r^{-n}$ vorliegt. Diese Geschwindigkeitsabhängigkeit kann gemessen werden, indem bei konstanter Quecksilberteilchendichte die Temperatur der Resonanzzelle variiert wird. Solche Messungen wurden von Brossel u. Faroux /36/ am 6 $^3P_1$-Zustand von ^{198}Hg durchgeführt. Brossel u. Faroux beobachteten bei den leichten Edelgasen Helium und Neon Abweichungen von der für ein Dipol-Dipolpotential erwarteten Geschwindigkeitsabhängigkeit. Im Hinblick auf diese Ergebnisse wäre es deshalb wünschenswert, solche Messungen auch für Stöße von Quecksilberatomen im 6 $^3P_2$-Zustand mit Fremdgasen durchzuführen. Dazu müßte allerdings, wegen der geringen Geschwindigkeitsabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte für desorientierende Stöße, die Meßgenauigkeit noch weiter gesteigert werden.

V. Zusammenfassung

Die Wirkungsquerschnitte für den Abbau einer Orientierung σ_1 und den Abbau einer Ausrichtung σ_2 im 6 $^3P_2$-Zustand der geraden Quecksilberisotope wurden für Stöße mit Edelgasen und mit Stickstoff gemessen. Zur Anregung des metastabilen 6 $^3P_2$-Zustandes wurde eine optische Zweistufenabsorption mit nachfolgender Emission in den $^3P_2$-Zustand angewandt. Die Messung der Relaxationsraten γ_k erfolgte über die direkte Beobachtung des Zeitverhaltens der Orientierung bzw. Ausrichtung der Quecksilberatome nach dem Abschalten einer Hochfrequenzstörung.

Die auf diese Weise gemessenen Wirkungsquerschnitte σ_1 und σ_2 stimmen recht gut mit den theoretischen Werten überein. Insbesondere konnten die, von verschiedenen Autoren /15-17/ berechneten Werte für das Verhältnis σ_1/σ_2 innerhalb der Meßgenauigkeit gut bestätigt werden. Allerdings reicht die Meßgenauigkeit nicht aus, um zwischen den verschiedenen theoretischen Werten für σ_1/σ_2 und damit auch zwischen den verschiedenen Ansätzen für die Wahrscheinlichkeit für Desorientierung bei kleinen Stoßparametern differenzieren zu können.

Herrn Prof. Dr. H.Krüger möchte ich für sein stets förderndes Interesse an dieser Arbeit danken. Herrn Prof. Dr. M.Baumann bin ich für die Anregung zu dieser Arbeit und für viele hilfreiche Diskussionen zu Dank verpflichtet.

VI. Literaturverzeichnis

/1/ M.Baumann, Z.Physik 173, 519 (1963)

/2/ M.Baumann, E.Jacobson, Z.Physik 212, 32 (1968)

/3/ K.Tittel, Z.Physik 187, 421 (1965)

/4/ M.Baumann, A.Eibofner, Z.Naturforsch. 23a, 1409 (1968)

/5/ M.Barrat, D.Casalta, C.R. Acad. Sc. 265, 35 (1967)

/6/ E.Jacobson, Z.Physik 251, 214 (1972)

/7/ M.Baumann, E.Jacobson, W.Koch, Z.Naturforsch. 29a, 661 (1974)

/8/ B.Lahaye, J. de Physique 35, 1 (1974)

/9/ M.Barrat, C.R. Acad. Sc. 259, 1063 (1964)

/10/ H.Oehler, Diplomarbeit Tübingen 1973

/11/ M.Barrat, J.Duclos, C.R. Acad. Sc. 263, 1170 (1966)

/12/ F.W.Byron, H.M.Foley, Phys.Rev. 134, 625 (1964)

/13/ A.Omont, J. de Physique 26, 26 (1965)

/14/ P.R.Berman, W.E.Lamb, Phys.Rev. 187, 221 (1969)

/15/ C.G.Carrington, A.Corney, J.Phys. B4, 869 (1971)

/16/ C.H.Wang, W.J.Tomlinson, Phys.Rev. 181, 115 (1969)

/17/ A.G.Petrashen, V.N.Rebane, T.K.Rebane, Opt. Spektrosk. 35, 408 (1973)

/18/ H.G.Dehmelt, Phys.Rev. 103, 1125 (1965)

/19/ M.Lombardi, J.C.Pebay-Peyroula, C.R. Acad. Sc. 261, 1485 (1965)

/20/ J.P.Barrat, B.Cheron, J.L.Cojan, C.R. Acad. Sc. 259, 3475 (1964)

/21/ M.I.D'Yakonov, Soviet. Phys. JEPT 20, 1484 (1965)

/22/ U.Fano,Rev. Mod. Phys. 29, 74 (1957)

/23/ A.Omont, Atomic physics 2, London and New York Plenum Press, 191 (1971)

/24/ S.Pancharatnam, Proc. Roy. Soc. A330, 265 (1972)

/25/ M.Lombardi, J. de Physique 30, 631 (1969)

/26/ E.Jacobson, J. Phys. B10, 3409 (1977)

/27/ A.Kastler, J. Phys. Rad. 11, 255 (1950)

/28/ J.Brossel, J.Bitter, Phys. Rev. 86, 308 (1952)

/29/ A.C.G.Mitchell, M.W.Zemansky, Resonance Radiation and Excited Atoms, Cambridge, University Press (1961)

/30/ A.Linca, Diplomarbeit Tübingen (1976)

/31/ J.P.Barrat, D.Casalta, J.L.Cojan, J.Hamel, J. de Physique 27, 608 (1966)

/32/ J.S.Deech, J.Pitre, L.Krause, Can. Journal of Physics 49, 1976 (1971)

/33/ H.M.Gibbs, Phys. Rev. A5, 2404 (1972)

/34/ E.Clementi, D.L.Raimondi, W.P.Reinhardt, Journal of Chemical Physics 47, 1300 (1961)

/35/ E.Clementi, D.L.Raimondi, Journal of Chemical Physics 38, 2686 (1963)

/36/ J.Brossel, J.P.Faroux, C.R. Acad. Sc. 265, 1412 (1967)

Lebenslauf

Am 19. Juni 1944 wurde ich in Trossingen als einziges Kind des Akkordeongehäusebauers Jakob Koch und seiner Ehefrau Anna, geb. Koch geboren. In den Jahren 1951 bis 1955 besuchte ich die Volksschule in Trossingen. Danach wechselte ich auf das Progymnasium Trossingen über, das ich bis 1961 besuchte. Von 1961 bis 1964 besuchte ich dann das Gymnasium in Schwenningen. Dort legte ich im März 1964 die Reifeprüfung ab. Nach 18 Monaten Wehrdienst in München begann ich im Wintersemester 1965/66 an der Eberhard-Karls Universität in Tübingen das Studium der Physik. Die Diplom-Vorprüfung legte ich im Mai 1968 ab, die Diplomprüfung im April 1972. Das Thema meiner Diplomarbeit war: "Messung der Wirkungsquerschnitte für die Desorientierung von Quecksilberatomen im metastabilen $6\,^3P_2$-Zustand durch Stöße mit Stickstoff-, Wasserstoff- und Kohlendioxidmolekülen". Von Juni 1972 bis November 1977 arbeitete ich am Physikalischen Institut der Universität Tübingen unter der Leitung von Prof.Dr.M.Baumann an der vorliegenden Dissertation: "Untersuchungen zum Relaxationsverhalten von Quecksilberatomen im metastabilen $6\,^3P_2$-Zustand bei Stoßprozessen".

Meine akademischen Lehrer waren die Herren Professoren und Dozenten: Baumann, Braunbek, Elwert, Krüger, Lenz, Mack, Möllenstedt, Sommer, Stumpf, Wildermuth, Wittern (Physik). Betsch, Hewers, Reimer, Roquette, Tamaschke, Wielandt, Wolf, Zeller (Mathematik). Bues, Müller, Rüdorff (Chemie).

Druck: Polyfoto - Dr. Vogt KG
Forststraße 58, 7000 Stuttgart 1
Telefon 0711/ 61 06 41 / 42

Druck: Polyfoto - Dr. Vogt KG
Forststraße 58, 7000 Stuttgart 1
Telefon 0711/ 61 06 41 / 42